

# **Photodoppelionisation von Helium**

## **Dynamik von Zweielektronenprozessen bei Absorption von linear und zirkular polarisierten Photonen**

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe–Universität  
in Frankfurt am Main

von  
**Alexandra Knapp**  
aus Frankfurt am Main

Frankfurt am Main 2005  
DF1

vom Fachbereich Physik der  
Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. W. Aßmus

Gutachter: Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking und Prof. Dr. R. Dörner

Datum der Disputation: 31. März 2005

# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird die Photodoppelionisation (PDI) von Helium (He) experimentell untersucht. Dazu wurde an der Synchrotronstrahlenquelle Advanced Light Source des Lawrence Berkeley National Laboratory (USA) der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt (FDCS) der PDI von He mit linear sowie mit links und rechts zirkular polarisiertem Licht bei den zwei Photon-Energien  $E_\gamma = 179$  eV und  $E_\gamma = 529$  eV gemessen. Dabei gelang erstmals eine Messung, bei der die Summenenergie der Fragmente im Kontinuum wesentlich über der Bindungsenergie (79 eV) des Systems liegt. Aufgrund dieser hohen Energie lassen die gemessenen Winkel- und Energieverteilungen erstmals Rückschlüsse auf die Wechselwirkungsprozesse bei der Ionisation zu. In allen bisherigen Messungen bei niedrigen Photon-Energien überdeckt der Einfluß der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Endzustand alle Spuren der seit langem theoretisch diskutierten Reaktionsmechanismen.

Der FDCS der PDI von He wurde mit einer COLTRIMS (COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy)-Apparatur gemessen. Hierbei wird das Gastarget durch eine adiabatische Expansion gekühlt und dann mit dem Photon-Strahl zum Überlapp gebracht. Die bei einer Reaktion freigesetzten Elektronen, deren Summenenergie sich zu  $E_{sum} = E_1 + E_2 = E_\gamma - 79$  eV berechnet (die Summenenergie der beiden Elektronen ist gleich der Überschußenergie  $E_{exc}$ ), werden mit einer Energie bis zu  $E_{1,2} = 60$  eV durch ein elektrisches und ein magnetisches Feld im vollen Raumwinkel von  $4\pi$  auf einem großen ortssensitiven Detektor abgebildet. Das elektrische Feld projiziert die kalten Rückstoßionen auf einen zweiten ortssensitiven Detektor. Aus der Flugzeit und dem Auftreffort werden der Ladungszustand und der Impuls der Teilchen ermittelt.

Aus den gemessenen Impulsverteilungen kann folgendes näher untersucht werden:

- Energieaufteilung auf die beiden Elektronen
- Emission der Elektronen in bezug zur Polarisationsachse in Abhängigkeit von ihrer Energie (Anisotropie-Parameter)
- Häufigkeitsverteilung der Zwischenwinkel der Elektronen bei der Absorption von linear und zirkular polarisiertem Licht
- Verlauf des Zirkularen Dichroismus, der ein Maß für die bei der PDI mit zirkular polarisiertem Licht auftretende Chiralität ist, gegen den Elektronen-Zwischenwinkel
- Extraktion der dynamischen Parameter (Quadrate der geraden und der ungeraden Amplituden und der Relativphase zwischen beiden Amplituden), die die gesamte kinematische Information der Doppelionisation beinhalten
- Untersuchung der Gültigkeit der Wannier-Näherung bei  $E_{exc} = 100$  eV

- Untersuchung der PDI-Mechanismen in Abhängigkeit von der Energieaufteilung anhand der Winkelverteilungen der Elektronen bei einer Überschußenergie von  $E_{exc} = 450 \text{ eV}$

## Ergebnisse

Die Energieaufteilung auf die beiden Elektronen erfolgt asymmetrisch. Diese Asymmetrie ist bei der PDI 450 eV über der Doppelionisationsschwelle (79 eV) stärker ausgeprägt als bei  $E_{exc} = 100 \text{ eV}$ . Langsame Elektronen werden generell isotrop zur Polarisierung emittiert ( $\beta = 0$ ), während die 100 eV-Elektronen einen Anisotropie-Parameter von  $\beta \cong 1,7$  und die sehr schnellen 450 eV-Elektronen sogar eine Dipolverteilung ( $\beta \cong 2$ ) bzgl. der Polarisationsachse aufweisen.

Eine asymmetrische Energieaufteilung zusammen mit einem Anisotropie-Parameter von  $\beta \cong 2$  für die 450 eV-Elektronen zeigt, daß bei der PDI 450 eV über der Schwelle ein Zwei-Stufen-Prozeß vorliegt, in dem das erste Elektron die Energie und den Drehimpuls des Photons aufnimmt. Das zweite Elektron gelangt dann durch den Shake-off oder den Two-Step-One-Mechanismus ins Kontinuum.

Sowohl die Häufigkeitsverteilung der Zwischenwinkel der Elektronen als auch der Verlauf der Quadrate der geraden und der ungeraden Amplituden bei der PDI 450 eV über der Schwelle zeigen, daß sehr langsame Elektronen (2 eV) hauptsächlich durch den Shake-off-Mechanismus ins Kontinuum gelangen, während etwas schnellere 30 eV-Elektronen ihre Energie über einen (e,2e)-Stoß (Two-Step-One-Mechanismus) erhalten.

Für 100 eV über der Schwelle zeigt sich, daß der Relativimpulsvektor der beiden Elektronen parallel zum Polarisationsvektor steht. Das bedeutet, daß die PDI von He 100 eV über der Schwelle nicht mehr im Gültigkeitsbereich der Wannier-Näherung liegt. Aufgrund der großen Geschwindigkeitsdifferenzen kann der Aufbruch des korrelierten Elektronenpaares von Helium parallel zum Polarisationsvektor erfolgen.

Der gegen den Zwischenwinkel  $\varphi_{12}$  der Elektronen aufgetragene normierte Zirkulare Dichroismus  $CD_n$  ist bei  $E_{exc} = 100 \text{ eV}$  wesentlich stärker (Extremum liegt bei  $CD_{n,max} \cong 0,7$ ) ausgeprägt als bei  $E_{exc} = 450 \text{ eV}$  (Extremum bei  $CD_{n,max} \cong 0,2$ ). Der maximale Wert ist für alle Energieaufteilungen - außer der symmetrischen - gleich. Für beide Überschußenergien findet man eine Abhängigkeit der  $\varphi_{12}$ -Position des Extremums von der Energieaufteilung. Die Extrema entfernen sich mit zunehmender asymmetrischer Energieaufteilung von  $\varphi_{12} = 180^\circ$ .

Die experimentell gewonnenen Ergebnisse zu den vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitten der PDI von He sowohl mit linear als auch mit links und rechts zirkular polarisiertem Licht bei 100 eV und 450 eV über der Doppelionisationsschwelle zeigen insgesamt gute Übereinstimmungen mit den Ergebnissen der convergent-close-coupling-Rechnungen von A. Kheifets und I. Bray.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen und Stand der Forschung</b>	<b>7</b>
2.1	Photoeinfachionisation . . . . .	7
2.2	Photodoppelionisation . . . . .	8
2.2.1	Mechanismen der Doppelionisation . . . . .	9
2.2.2	$\beta$ -Parameter . . . . .	15
2.2.3	Auswahlregeln . . . . .	17
2.3	Wannier-Näherung . . . . .	20
2.4	Zirkularer Dichroismus . . . . .	23
2.5	Parametrisierung des Übergangsmatrixelementes . . . . .	26
2.5.1	Parametrisierung für linear polarisiertes Licht . . . . .	26
2.5.2	Parametrisierung für zirkular polarisiertes Licht . . . . .	33
2.5.3	Beziehung der vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte von linear zu denen von zirkular polarisiertem Licht . . . . .	35
2.6	Berechnungsverfahren . . . . .	37
2.6.1	3-Coulomb-Wave . . . . .	37
2.6.2	Convergent-close-coupling . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>39</b>
3.1	Das COLTRIMS-Meßprinzip . . . . .	40
3.2	Verwendeter Aufbau . . . . .	42
3.3	Erzeugung von Synchrotronstrahlung . . . . .	44
3.4	Das Target . . . . .	52
3.5	Das Spektrometer . . . . .	55
3.5.1	Anforderungen an das Spektrometer . . . . .	55
3.5.2	Rückstoßionen-Spektrometer . . . . .	56
3.5.3	Elektronen-Spektrometer . . . . .	58

3.6	Die Detektoren . . . . .	61
3.6.1	Micro-Channel-Plate . . . . .	61
3.6.2	Delay-Line-Anode . . . . .	61
3.7	Signalverarbeitung . . . . .	63
<b>4</b>	<b>Datenanalyse</b>	<b>65</b>
4.1	Messung . . . . .	65
4.2	Kalibrierung . . . . .	67
4.2.1	Kalibrierung des Rückstoßionen-Spektrometers anhand der einfach geladenen Heliumionen . . . . .	67
4.2.2	Kalibrierung des Elektronen-Spektrometers . . . . .	68
4.2.3	Überprüfung der Kalibrierung auf Impulserhaltung . . . . .	69
4.3	Überprüfung der Energie-Erhaltung . . . . .	71
4.4	Normierung der Daten . . . . .	72
4.5	Extraktion der Amplituden . . . . .	73
<b>5</b>	<b>Ergebnisse der PDI 100 eV über der Schwelle</b>	<b>77</b>
5.1	SDCS und $\beta$ -Parameter . . . . .	77
5.2	Impulsverteilung . . . . .	79
5.3	Darstellung des 5DCS mit linear polarisiertem Licht . . . . .	81
5.4	Darstellung des 5DCS mit zirkular polarisiertem Licht . . . . .	88
5.5	Zirkularer Dichroismus . . . . .	91
5.6	Konsistenz-Überprüfung . . . . .	92
5.7	Amplituden und deren Relativphase . . . . .	93
<b>6</b>	<b>Ergebnisse der PDI 450 eV über der Schwelle</b>	<b>99</b>
6.1	SDCS und $\beta$ -Parameter . . . . .	99
6.2	Darstellung des 5DCS mit linear polarisiertem Licht . . . . .	101
6.3	Darstellung des 5DCS mit zirkular polarisiertem Licht . . . . .	107
6.4	Zirkularer Dichroismus . . . . .	108
6.5	Konsistenz-Überprüfung . . . . .	110
6.6	Amplituden und deren Relativphase . . . . .	110
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>115</b>
<b>A</b>	<b>Atomare Einheiten</b>	<b>121</b>

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	VII
<b>B Verzeichnis der verwendeten Symbole</b>	<b>123</b>
<b>C Ausgewählte Spektren</b>	<b>125</b>
<b>D Shake-off-only-Rechnung</b>	<b>131</b>
<b>E Gleichung 2.20</b>	<b>135</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>137</b>





# Kapitel 1

## Einleitung

Dynamische Prozesse - wie Bewegungsänderungen von Körpern unter dem Einfluß von Kräften - sind ein elementarer Bestandteil unserer Welt, sowohl makroskopisch als auch mikroskopisch: Stoffliche Veränderungen in der Chemie resultieren dabei aus der Dynamik zwischen Elektronen und Ionen. Chemische Prozesse sind wiederum ein essentieller Bestandteil der Biologie. Somit wird deutlich: Ohne dynamische Prozesse wäre Leben nicht möglich.

Bei diesen dynamischen Prozessen sind in der Regel mehrere Teilchen gleichzeitig beteiligt. Da für ein System mit mehr als zwei Körpern die Bewegungsgleichungen analytisch nicht mehr gelöst werden können, müssen hierfür geeignete Näherungen gefunden werden. Wie genau diese Näherungen die Realität beschreiben, zeigt ein Vergleich theoretischer Rechnungen mit den Ergebnissen des jeweiligen (in den Randbedingungen vergleichbaren) Experiments.

Um die Dynamik von Teilchen, die in einem quantenmechanischen System – wie z.B. dem Helium-Atom – gebunden sind, studieren zu können, muß das System „gestört“ werden; ein geladenes Teilchen oder ein Photon kann eine solche Störung und damit einen dynamischen Prozeß, den Aufbruch des quantenmechanischen Systems hervorrufen.

Um die dynamischen Vorgänge, die durch die Störung hervorgerufen werden, untersuchen zu können, müssen die kinematisch vollständigen Informationen des Endzustandes, also die Impulskomponenten aller Teilchen bekannt sein. Die Ausrichtung des Spins der Teilchen wird in der Regel nicht gemessen. Die gemessenen Impulskomponenten sind die Observablen bei dem betrachteten dynamischen Prozeß<sup>1</sup>.

Die Theorie versucht, die Häufigkeitsverteilung dieser Impulse zu berechnen. Dabei dienen die Ergebnisse eines Experiments nicht nur zum Vergleich und zur Überprüfung der Qualität und Anwendbarkeit der theoretischen Berechnungen. Man möchte generell

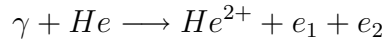
---

<sup>1</sup>Damit keine Missverständnisse auftreten, muß der Begriff „Dynamik“, so wie er in dieser Arbeit und in vielen Veröffentlichungen zu finden ist, näher erläutert werden: „Untersuchung der Dynamik“ heißt nicht, daß die Impulskomponenten zeitaufgelöst gemessen werden. Indem aber die kinematische Information des Endzustands bekannt ist, ergibt sich die Möglichkeit, Aussagen über die „dynamischen“ Prozesse zu gewinnen.

mehr über die dynamischen Prozesse herausfinden. Warum beobachtet man gerade *diese* Verteilung der Impulse? Welche Prozesse laufen nach der Störung des Systems ab, die dann die jeweilige Häufigkeitsverteilung der Observablen zur Folge haben?

### Die Photodoppelionisation von Helium als elementarer Drei-Körper-Prozeß zur Untersuchung der Elektronen-Dynamik

Die Photodoppelionisation von Helium<sup>2</sup> wird als elementarer Drei-Teilchen-Prozeß besonders häufig untersucht. Nach Absorption eines Photons mit einer Energie<sup>3</sup> von mindestens 79 eV befinden sich alle drei geladenen Teilchen (zwei Elektronen und der doppelt geladene Heliumkern) im Kontinuum:



Innerhalb der Dipolnäherung<sup>4</sup>, in der der lineare Impuls des Photons vernachlässigt werden darf, überträgt das Photon Energie, Drehimpuls und negative Parität auf das Helium-Atom. Ein Teil der Photon-Energie muß für die Austrittsarbeit der beiden Elektronen aufgebracht werden, die zusammen mit 79 eV gebunden sind. Die Summe aller Energien der Teilchen berechnet sich zu:  $E_{kin} = E_\gamma - 79 \text{ eV} = E_{exc}$ , wobei  $E_{exc}$  Überschußenergie genannt wird. Aufgrund der 7300 mal größeren Masse des Heliumkerns gegenüber einem Elektron ist die kinetische Energie des Kerns vernachlässigbar. Die Überschußenergie teilt sich auf die beiden Elektronen auf. Die Darstellung der Impuls-Bilanz hängt von der Energie des Photons ab; dessen Impuls berechnet sich zu

$$p_\gamma[\text{a.u.}] = \frac{E_\gamma[\text{eV}]}{27,2 \cdot 137} \quad (1.1)$$

Bei den im Experiment gewählten Photon-Energien ist der Photon-Impuls<sup>5</sup> gegenüber den typischen Elektronen-Impulsen zu vernachlässigen. Damit ergibt sich die Impuls-Bilanz zu:  $\vec{p}_1 + \vec{p}_2 + \vec{p}_{He^{2+}} = 0$ , wobei  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$  die Impulse der beiden Elektronen und  $\vec{p}_{He^{2+}}$  der Impuls des doppelt geladenen Heliumions ist. Eine vollständige Betrachtung der Impulse inklusive des Photon-Impulses findet sich in [2].

---

<sup>2</sup>Eine Übersicht über die Photodoppelionisation von Helium gibt [1].

<sup>3</sup>Die Energie des Photons muß mindestens so groß wie die Bindungsenergie der beiden Elektronen im Helium sein. Da die beiden Elektronen zusammen mit 79 eV gebunden sind, muß die Energie des Photons  $E_\gamma \geq 79 \text{ eV}$  sein, damit eine Doppelionisation eintreten kann.

<sup>4</sup>Die Dipolnäherung ist dann eine gute Beschreibung, wenn die Wellenlänge des Lichtes groß gegenüber dem Durchmesser des Atoms ist.

<sup>5</sup>Der Photon-Impuls beträgt für die Photon-Energie  $E_\gamma = 179 \text{ eV}$   $p_\gamma = 0,048 \text{ a.u.}$ , der klein gegenüber den typischen Elektronen-Impulsen von  $p = 0,86 \text{ a.u.}$  ist. Ein Elektronen-Impuls von  $p = 0,86 \text{ a.u.}$  entspricht einer Energie von 10 eV. „a.u.“ ist die Abkürzung für atomare Einheiten. Mehr dazu im letzten Abschnitt dieses Kapitels und im Anhang A.

Die Eigenschaften eines Heliumatoms im Grundzustand sind: Drehimpuls  $L = 0$ , antiparallele Ausrichtung der Spins beider Elektronen und gerade Parität. Man sagt, der Anfangszustand besitzt  $^1S_0$ -Symmetrie<sup>6</sup>. Durch die Absorption eines Photons, das den Drehimpuls  $L = 1$  und negative Parität mitbringt, ist der Endzustand durch die  $^1P_1$ -Symmetrie gegeben. Das System hat nun einen Gesamtdrehimpuls von  $L = 1$  und negative Parität.

Aufgrund obiger Eigenschaften ist die Photodoppelionisation von Helium ein vergleichsweise einfacher Prozeß. Daher ist sie besonders gut für die Untersuchung der folgenden **Fragen** geeignet:

1. Wie wird die Überschußenergie  $E_{exc}$  auf die beiden Elektronen aufgeteilt?
  - Wird die Energie überwiegend gleich aufgeteilt?
  - Oder findet man häufig jeweils ein sehr schnelles und ein dementsprechend besonders langsames Elektron?
2. Wie verhält sich der Summenimpuls  $\vec{p}_+ = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$  und der Relativimpuls  $\vec{p}_- = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$  zum Polarisationsvektor?
3. Wie wird der Drehimpuls  $L = 1$  des Photons auf die Teilchen aufgeteilt?
  - Absorbiert ein Elektron den gesamten Drehimpuls  $L = 1$  des Photons?
  - Wie ist die Häufigkeitsverteilung der Emissionswinkel der Elektronen bezüglich des Polarisationsvektors in Abhängigkeit von der Energie des Elektrons?
4. Welche Häufigkeitsverteilung weist der Zwischenwinkel beider Elektronen in Abhängigkeit von der Energieaufteilung und der Polarisation des Lichtes auf?
5. Was läßt sich über den qualitativen Ablauf der Photodoppelionisation aussagen? Durch welchen Prozeß, bzw. durch welche Prozesse gelangen beide Elektronen ins Kontinuum?
  - Welche theoretischen Überlegungen bzgl. eines oder mehrerer Mechanismen der Doppelionisation sind in der Literatur bekannt?
  - Gibt es eine Möglichkeit, die verschiedenen Mechanismen anhand der Observablen voneinander zu unterscheiden?

Um den Doppelionisationsprozeß zu untersuchen und damit die obigen Fragestellungen beantworten zu können, braucht man die kinematisch vollständige Information des Endzustandes. Der Endzustand des Prozesses ist erreicht, wenn alle drei Teilchen sich

---

<sup>6</sup>Diese Notation drückt aus, daß die Gesamtspinquantenzahl, der Bahndrehimpuls und der Gesamtdrehimpuls des Anfangszustandes Null sind.

soweit voneinander entfernt haben, daß die Kräfte aufeinander vernachlässigbar sind und jedes der drei Teilchen sich mit konstantem Impuls geradlinig-gleichförmig bewegt.

Dieser Endzustand ist durch die Impulsvektoren der drei Teilchen - also insgesamt durch neun Impulskomponenten - im Kontinuum gegeben. Von diesen neun Impulskomponenten sind allerdings aufgrund von Energie- und Impulserhaltung nur fünf voneinander linear unabhängig.

Für die Bestimmung des Endzustandes müssen diese fünf Impulskomponenten, muß also der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt (5DCS) gemessen werden; dieser gibt die Wahrscheinlichkeit an, daß zwei Elektronen mit den Energien  $E_1$  und  $E_2$  (mit  $E_1 + E_2 = E_\gamma - 79 \text{ eV} = E_{exc} = \text{konstant}$ ) in zwei Raumwinkelementen  $d\Omega_1$  und  $d\Omega_2$  zu finden sind. Dieser fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt läßt sich mathematisch folgendermaßen ausdrücken:

$$\begin{aligned} 5\text{DCS} &= \frac{d^3\sigma}{(d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1)} = \frac{d^5\sigma}{(dE_1 \sin\vartheta_1 d\vartheta_1 \sin\vartheta_2 d\vartheta_2 d\varphi_1 d\varphi_2)} \\ &= \frac{d^5\sigma}{(dE_1 d\cos\vartheta_1 d\cos\vartheta_2 d\varphi_1 d\varphi_2)} \end{aligned} \quad (1.2)$$

Innerhalb der Dipolnäherung ist die Polarisationsachse eine Symmetrieachse, so daß sich der fünffachdifferentielle Wirkungsquerschnitt dann zu einem vierfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitt (4DCS) reduzieren läßt:

$$4\text{DCS} = \frac{d^4\sigma}{(dE_1 d\cos\vartheta_1 d\cos\vartheta_2 d\varphi_{12})} \quad (1.3)$$

Durch Integration über eine oder mehrere Variablen lassen sich dann unter anderem Aussagen zur Energieaufteilung, zur Häufigkeitsverteilung der Emissionswinkel bzgl. der Polarisationsachse in Abhängigkeit der Energie eines Elektrons oder zur Häufigkeitsverteilung der Zwischenwinkel zwischen beiden Elektronen machen.

## Meßmethode

Der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt läßt sich mittels der COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS)-Methode messen [3, 4, 5, 6]. Diese Meßmethode zeichnet sich dadurch aus, daß die Impulskomponenten aller geladenen Teilchen, die eine gewisse Maximalenergie nicht überschreiten, unabhängig von ihrer Emissionsrichtung im vollen Raumwinkel von  $4\pi$  koinzident gemessen werden können.

Bei dieser Methode wird der Photonen-Strahl in einem Überschall-Heliumjet fokussiert. Elektronen werden bis zu einer gewissen Maximalenergie durch ein elektrisches und ein magnetisches Feld im vollen Raumwinkel von  $4\pi$  auf einem großen ortssensitiven Micro-Channel-Plate-Delay-Line-Detektor abgebildet. Diese Maximalenergie hängt

von der Stärke des magnetischen Feldes, von der Geometrie des Spektrometers und von der Größe des ortssensitiven Detektors ab. Das elektrische Feld projiziert die Rückstoßionen auf einen zweiten ortssensitiven Detektor. Aus der Flugzeit und dem Auftreffort läßt sich der Ladungszustand und der Impuls der Teilchen ermitteln. Aus den einzelnen dreidimensionalen Impulsvektoren ergeben sich die benötigten Energien und die Polar- und Azimutalwinkel der Teilchen, um die Winkelverteilung der beiden Elektronen zu untersuchen.

Da bei dieser Meßmethode so gut wie keine Einschränkungen bzgl. der Energieaufteilung und der Emissionswinkel der Elektronen zur Polarisationsachse bestehen, ist diese Methode besonders geeignet, die Photodoppelsonisation von Helium auf die gestellten Fragen hin zu untersuchen.

Da zum Zeitpunkt dieser Messung Ergebnisse zu koinzident gemessenen Photodoppelsonisations-Experimenten mit einer Photonenergie bis zu  $E_\gamma = 139$  eV vorhanden waren, galt es vor allem, die Photodoppelsonisation bei höheren Photon-Energien zu untersuchen. Theoretische Überlegungen [7, 8] geben Hinweis darauf, daß es erst bei hohen Photon-Energien möglich sein wird, die Mechanismen der Doppelsonisation zu untersuchen.

Bei der Messung wurden zwei Photon-Energien:  $E_\gamma = 179$  eV und 529 eV, und drei verschiedene Polarisationszustände gewählt: linear polarisiert sowie links und rechts zirkular polarisiert.

Neben den Fragen 1 bis 4 untersucht diese Arbeit speziell Fragestellung 5, inwieweit man etwas über die Mechanismen der Doppelsonisation aussagen kann.

## Gliederung

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert:

In *Kapitel 2* wird ein Überblick über den Stand der Forschung gegeben; und es werden die theoretischen Grundlagen erläutert, die zum Verständnis und zur Interpretation der experimentellen Daten nötig sind.

In *Kapitel 3* wird das Meßprinzip erläutert und der spezielle Aufbau der Experimentierkammer vorgestellt. Neben der Erzeugung von Synchrotronstrahlung und der Beschreibung der einzelnen Komponenten des Strahlrohres 4.0.2 der Advanced Light Source, an dem dieses Experiment durchgeführt wurde, wird auf die Targetpräparation und das Spektrometer mit den ortssensitiven Detektoren eingegangen.

In *Kapitel 4* wird die Datenanalyse erläutert. Dabei wird zunächst beschrieben, warum man als Kalibrationsmessung die Photoeinfachionisation bei verschiedenen Photon-Energien verwendet. Es werden Möglichkeiten vorgestellt, die Kalibration auf ihre Güte zu überprüfen. Nachdem die Kalibrationen abgeschlossen und für jedes einzelne Ereignis die Impulse der drei Teilchen bekannt sind, wird auf die Normierung der Daten eingegangen. Eine Normierung ist sinnvoll, damit man die gewonnenen Daten mit theoretischen Rechnungen und anderen experimentellen Daten vergleichen kann. Im

letzten Unterkapitel wird eine Methode vorgestellt, wie man aus einem vollständigen COLTRIMS-Datensatz die gerade und ungerade Amplitude und deren Relativphase extrahieren kann. Diese Amplituden und deren Relativphase enthalten die gesamte kinematische Information der Photodoppelionisation.

In *Kapitel 5 und 6* werden schließlich die Ergebnisse der Messungen bei 100 eV und 450 eV über der Schwelle<sup>7</sup> und deren Interpretation geschildert. *Kapitel 7* gibt eine Zusammenfassung der Ergebnisse und einen Ausblick.

Für die Beschreibung von atomaren Prozessen werden häufig die Energien und die Impulse in „atomaren Einheiten“ angegeben, abgekürzt mit a.u. (= **a**tomic **u**nit). Diesen Einheiten liegt das Wasserstoff-Atom als Maßeinheit zugrunde. Die Impulse der einzelnen Teilchen sind ein Vielfaches des Impulses eines Elektrons, das auf der Bohr’schen Bahn ein Proton umkreist. Im *Anhang A* sind die Umrechnungsfaktoren von SI-Einheiten in atomare Einheiten aufgeführt, in *Anhang B* ist ein Verzeichnis der verschiedenen Abkürzungen und deren Bedeutung zu finden.

---

<sup>7</sup>Mit „Schwelle“ ist in der gesamten Arbeit immer die Doppelionisationsschwelle gemeint.

# Kapitel 2

## Grundlagen und Stand der Forschung

Im Folgenden werden die theoretischen Grundlagen dargelegt, die für die Interpretation der experimentellen Daten benötigt werden. Nach einer kurzen Einführung in die Grundkenntnisse der Einfachionisation wird die Photodoppelionisation von Helium beschrieben. Dabei wird zunächst auf die Wirkungsweise der beiden Doppelionisationsmechanismen „Shake-off“ und „Two-Step-One“ eingegangen. Es werden die Voraussagen und die ihnen zugrundeliegenden Überlegungen über die Dominanz der beiden Mechanismen in Abhängigkeit von der Photon-Energie und der Energieaufteilung dargelegt, um sie später mit den Ergebnissen der durchgeführten Experimente vergleichen zu können (Kapitel 6).

Des weiteren wird auf die Besonderheiten der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht gegenüber derjenigen mit linear polarisiertem Licht hingewiesen. Die Bedeutung des „Zirkularen Dichroismus“, der ein Maß für die bei der Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht auftretende Chiralität im Endzustand ist, wird erläutert, um diesen dann für eine Energie von 100 eV und 450 eV für verschiedene Energieaufteilungen in Kapitel 5.5 und 6.4 zu präsentieren.

Es wird die Parametrisierung von Huetz *et al.* [9] und Malegat *et al.* [10] vorgestellt, die erlaubt, den dynamischen Teil des Drei-Körper-Aufbruchs vom geometrischen Teil entkoppelt zu betrachten. Diese Parametrisierung macht es möglich, die dynamischen Aspekte der durchgeführten Photodoppelionisation im Detail zu untersuchen.

Zuletzt werden die Rechenmethoden 3-Coulomb-Wave (3C) und convergent-close-coupling (CCC) vorgestellt, mit deren Ergebnissen die experimentellen Daten verglichen werden.

### 2.1 Photoeinfachionisation

Für die Einfachionisation von Helium wird ein Photon mit einer Energie von  $E_\gamma \geq 24,6$  eV benötigt. Dabei absorbiert das Atom die Energie und den Drehimpuls des Photons; die kinetische Energie des Elektrons im Kontinuum berechnet sich zu

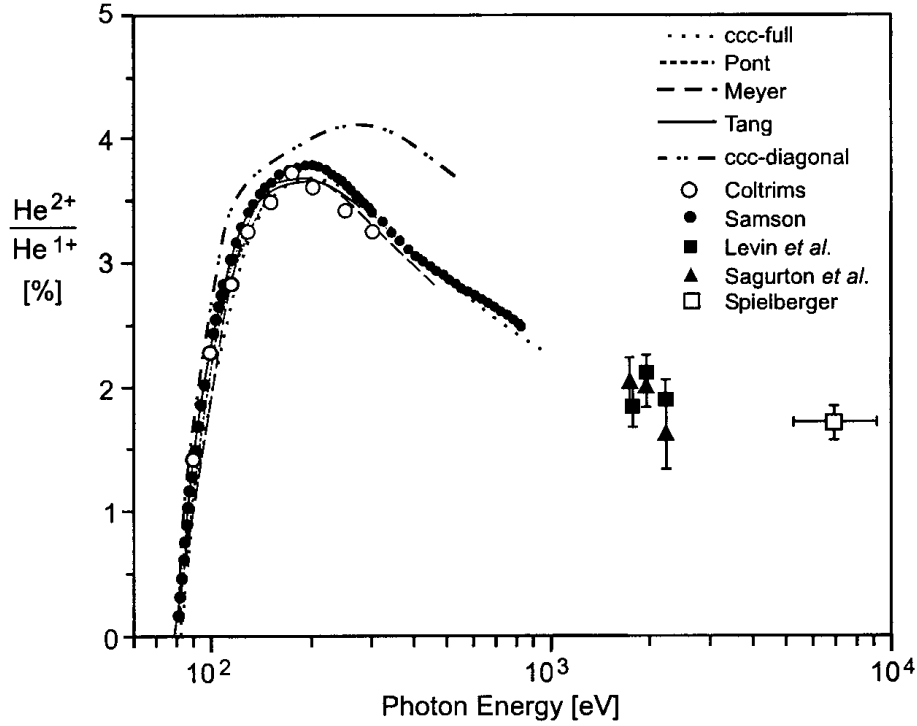


Abbildung 2.1: Verhältnis der Doppel- zur Einfachionisation:  $R = \sigma^{++}/\sigma^+$  von Helium durch Photoabsorption in %, aus [3]. Das Verhältnis  $R_\gamma$  steigt ab der Schwelle (bei 79 eV) bis zu einem Maximum bei etwa 200 eV in etwa linear an und fällt dann langsam auf ein Verhältnis von  $R = 1,67\%$  für  $E_\gamma \rightarrow \infty$  [12] ab.

$E_{kin} = E_\gamma - E_{Anr} - 24,6 \text{ eV}$  (mit  $E_{Anr}$  = Anregungsenergie des zweiten Elektrons), wobei die Energie des Rückstoßions aufgrund seiner etwa 7300 mal höheren Masse vernachlässigt werden darf. Innerhalb der Dipolnäherung, bei der der lineare Impuls des Photons vernachlässigt werden kann, ist der Impulsvektor des einfach geladenen Heliumions vom Betrage nach genau so groß wie der des Elektrons, zeigt aber in entgegengesetzte Richtung.

Der absolute Wirkungsquerschnitt  $\sigma^+$  für Photon-Energien, die wesentlich größer sind als das Ionisationspotential, ist nach [11] gegeben durch:  $\sigma^+ \propto E_\gamma^{-7/2}$ .

## 2.2 Photodoppelionisation

Ist die Energie des Photons größer als 79 eV, so kann neben der Einfach- auch die Doppelionisation auftreten, wobei die Wahrscheinlichkeit für eine Doppelionisation nur bis zu  $R_\gamma = \sigma^{++}/\sigma^+ = 3,7\%$  der Einfachionisation beträgt. Abbildung 2.1 zeigt das Verhältnis  $R_\gamma$  der Photodoppel- zur Photoeinfachionisation bis zu einer Photon-Energie von  $E_\gamma = 10^4 \text{ eV}$ . Direkt an der Doppelionisationsschwelle steigt das Verhältnis  $R_\gamma$  in etwa linear an, erreicht bei etwa 200 eV ein Maximum von 3,7% und fällt mit noch höheren



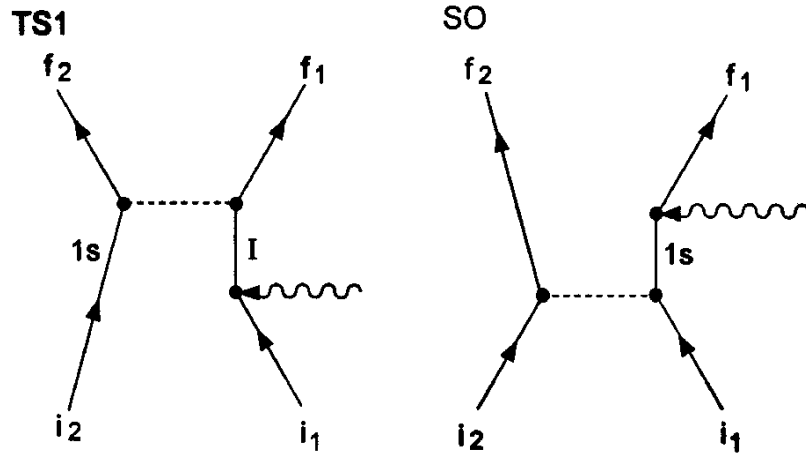


Abbildung 2.2: Feynman-Diagramme zur Veranschaulichung der Mechanismen der Photodoppelionisation von Helium; links: Two-Step-One (TS1), rechts: Shake-off (SO), aus [12]. Die Zeitachse läuft von unten nach oben. Die Schlangenlinie symbolisiert die Wechselwirkung eines Elektrons mit einem Photon. Die gestrichelte Linie stellt die Wechselwirkung der beiden Elektronen untereinander dar.  $i_1$  und  $i_2$  bezeichnen die Anfangszustände von Elektron 1 und Elektron 2,  $f_1$  und  $f_2$  sind die jeweiligen Endzustände. Beim TS1 findet die Elektron-Elektron-Wechselwirkung, die eine Coulomb-Wechselwirkung ist, nach der Photon-Absorption statt. Beim SO ergibt sich die Doppelionisation aus der Anfangszustandskorrelation der beiden Elektronen. Der Shake-off ist dabei als Verschränkung der beiden Elektronen zu verstehen.

Photon-Energien wieder ab.

Spielberger *et al.* [12] haben gezeigt, daß das Verhältnis  $R_\gamma$  bei hohen Photon-Energien einen konstanten Wert  $R_\gamma = 1,67\%$  anstrebt; die Ergebnisse von verschiedenen Experimenten [12, 13, 14, 15, 16] und die der theoretischen Rechnungen [7, 17, 18, 19] stimmen heute gut überein. Aus dem konstanten Verhältnis  $R_\gamma = \sigma^{++}/\sigma^+ = 1,67\%$  folgt, daß der totale Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation für  $E_\gamma \rightarrow \infty$  durch  $\sigma^{++} \propto E_\gamma^{-7/2}$  gegeben ist. Für das Verständnis dieser Vorgänge muß zunächst geklärt werden, durch welche Prozesse die beiden Elektronen nach Absorption eines einzelnen Photons ins Kontinuum gelangen können.

### 2.2.1 Mechanismen der Doppelionisation

Da der Photon-Operator, der die Photoionisation vermittelt, ein Einteilchen-Operator ist, erfordert die Doppelionisation eine Korrelation der Elektronen untereinander. Dabei spielt sowohl die Korrelation im Anfangs- als auch im Endzustand eine Rolle. Es gibt im wesentlichen zwei Mechanismen<sup>1</sup>, die die Doppelionisation *innerhalb* der Dipolnäherung bewirken: der Two-Step-One und der Shake-off-Mechanismus, wobei der Begriff

<sup>1</sup>In der Literatur wird von einigen wenigen Autoren der „ground state correlation“(GSC)-Mechanismus als dritter Mechanismus zu den möglichen Doppelionisationsmechanismen, die innerhalb der Dipolnäherung wirken, genannt. Der GSC ist aber im wesentlichen mit dem „Shake-off“ identisch. Eine ausführliche Betrachtung zu GSC gibt [12].

„Mechanismus“ hier ein intuitives Modell bezeichnet. Diese beiden Mechanismen dürfen in der Regel nicht separiert voneinander betrachtet werden, da die Übergangsamplituden zu den Mechanismen miteinander interferieren können. Die einzelnen Mechanismen sind jeweils nur in einigen wenigen Fällen direkt zugänglich, und zwar dann, wenn nur einer der beiden Mechanismen bestimmte Regionen des Phasenraums im Endzustand besetzt. In diesen Fällen sind dann die Interferenzen vernachlässigbar.

Die Mechanismen, die letztendlich nur ein anschauliches Bild der Anfangs- und der Endzustandskorrelation der Elektronen geben und nur in bestimmten Fällen separiert werden können, sind jedoch ein gutes Hilfsmittel, da sie zum einen schon vorhandene ( $\gamma, 2e$ )-Ergebnisse<sup>2</sup> anschaulich erklären, zum anderen Vorhersagen zulassen. Diese Vorhersagen können durch die Ergebnisse des durchgeführten ( $\gamma, 2e$ )-Experimentes bei 450 eV über der Schwelle überprüft werden.

Im folgenden werden die beiden Mechanismen „Shake-off“ und „Two-Step-One“ [20, 21, 22, 7, 23, 24, 25] beschrieben:

- **Der Two-Step-One-Mechanismus:**

Bei der Endzustandskorrelation wird das Photon von einem der beiden Elektronen absorbiert. Das Elektron geht in einen angeregten oder in den Kontinuumszustand über und wechselwirkt über die Coulomb-Kraft mit dem zweiten Elektron. Es kommt zu einem ( $e, 2e$ )-Stoß, wobei das zweite Elektron vom ersten - anschaulich gesprochen - aus dem Atompotential „gekickt“ wird. Dieser Prozeß wird in der Literatur manchmal „knock-out“, in den meisten Fällen Two-Step-One (TS1) genannt, da es sich um einen Zwei-Stufen-Prozeß handelt, wobei in der ersten Stufe das Photon einmal mit einem der beiden Elektronen wechselwirkt<sup>3</sup>; in der zweiten Stufe kickt dann das Elektron, welches das Photon absorbiert hat, das zweite Elektron heraus (knock-out). Abbildung 2.2, links, zeigt zur Verdeutlichung den TS1 als Feynman-Diagramm.

- **Der Shake-off-Mechanismus:**

Dieser Mechanismus, der auf der Korrelation im Anfangszustand beruht, läuft folgendermaßen ab: Auch hier wird das Photon von einem Elektron absorbiert, und es findet im ersten Schritt eine Einfachionisation statt. Die Eigenzustände im nicht mehr abgeschirmten Potential des Heliumkerns sind anders als im effektiven Ein-Elektronen-Zustand. Wird nun durch die Photo-Absorption ein freies Elektron erzeugt, das das System „Atom“ gegenüber typischen Relaxationszeiten schnell verläßt, so kann sich das verbleibende Elektron nicht auf den neuen Zustand einstellen und befindet sich mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im Kontinuum. Diesen

---

<sup>2</sup>Die Bezeichnung ( $\gamma, 2e$ ) stammt aus der Kernphysik und bezeichnet prinzipiell eine Photodoppelionisation.

<sup>3</sup>Handelt es sich beim Projektil nicht um ein Photon, sondern um ein geladenes Teilchen, so kann neben dem Two-Step-One (TS1) noch der Two-Step-Two (TS2) auftreten: hier wechselwirkt dann das Projektil nacheinander mit beiden Elektronen.

Prozeß nennt man Shake-off, da das verbleibende Elektron quasi vom Kern „abgeschüttelt“ wird. In diesem anschaulichen Bild muß die Ionisation schnell ablaufen, um das „Abschütteln“ zu ermöglichen. Abbildung 2.2, rechts, zeigt den Shake-off als Feynman-Diagramm.

Dieses intuitive Bild vom Shake-off-Mechanismus hat bei verschiedenen theoretischen Modellen allerdings unterschiedliche Bedeutung: Åberg [26] unterbindet nach Absorption des Photons jegliche Wechselwirkung der Elektronen, die Shake-off-Amplitude berechnet sich nach [27] zu:

$$|T_{SO}|^2 = \left| \int e^{i(q-p_1) \cdot r_1} \Phi_i^*(r_2, r_3 \dots r_N) \Psi(r_1, r_2 \dots r_N) dV \right|^2 \quad (2.1)$$

Hierbei ist  $\Psi(r_1, r_2 \dots r_N)$  die exakte Wellenfunktion des Anfangszustandes und  $\Phi_f^*(r_2, r_3 \dots r_N)$  kann durch  $e^{i(q-p_1) \cdot r_1} \Phi_i^*(r_2, r_3 \dots r_N)$  approximiert werden, wobei das schnelle Elektron den Impuls  $p_1$  besitzt.

Im Gegensatz dazu betrachtet A. Kheifets [7] neben der Anfangszustandskorrelation zusätzlich eine Wechselwirkung der beiden Elektronen im Endzustand, solange diese nicht die Quantenzahl vom zweiten Elektron ändert. Eine Übersicht der verschiedenen Definitionen des Shake-off gibt [28].

Neben diesen beiden Mechanismen soll es nach Amusia und Drukarev [29] einen dritten Mechanismus geben, der allerdings erst bei sehr hohen Photon-Energien ( $E_\gamma > 4$  keV), bei denen die Dipol-Näherung *nicht* mehr gültig ist, relevant sein sollte<sup>4</sup>. Dieser Mechanismus wird von Pratt *et al.* [30, 31] „**equal energy sharing mechanism**“ genannt, da bei diesem Mechanismus die Überschußenergie auf die beiden Elektronen gleichverteilt sein sollte.

Da die Absorption eines Photons durch *ein freies* Elektron nicht möglich ist<sup>5</sup>, muß für eine Photoabsorption ein weiteres Teilchen anwesend sein, damit Energie- und Impulsbilanz erfüllt sind. Dieses Teilchen ist bei dem Shake-off der Helium-Kern: Das Photon koppelt dabei an ein Elektron an, das sich *sehr nah* am Kern befindet, so daß Impulsaustausch zwischen dem Elektron und dem Kern erfolgen kann. Der Shake-off sollte demnach sensitiv auf die Anfangszustandskorrelation sein, bei der sich ein Elektron dicht am Kern aufhält.

Bei dem equal-energy-sharing-mechanism, der - wie der Shake-off - auf der Anfangszustandskorrelation basiert, sollte der Theorie [30, 31] entsprechend das Photon an ein Elektron ankoppeln, das sich *nicht* unmittelbar am Kern befindet. Das zweite Elektron stellt die Energie- und Impulsbilanz richtig. Damit sollte dieser Mechanismus sensitiv

---

<sup>4</sup>Da in der vorliegenden Arbeit die Photodoppelionisation bei den beiden Photon-Energien  $E_\gamma = 179$  eV und 529 eV untersucht wird, sind nur die beiden Mechanismen Shake-off und Two-Step-One von Relevanz. Die Wirkungsweise dieses dritten Mechanismus, der von vielen „equal energy sharing mechanism“ genannt wird, wird zur Vollständigkeit im folgenden näher erläutert.

<sup>5</sup>Der Betrag des Elektronenimpulses würde bei der Absorption eines Photons durch ein freies Elektron wesentlich größer sein als der des Photons.

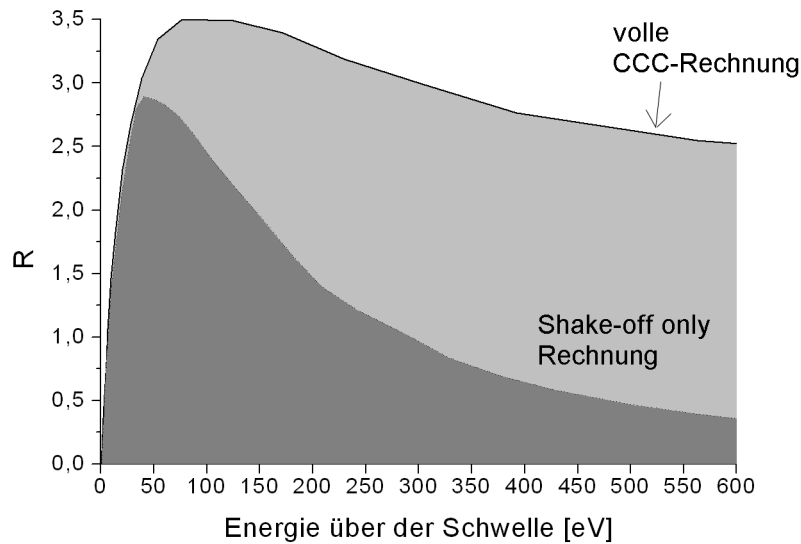


Abbildung 2.3: Anteil des Shake-offs am Verhältnis  $R_\gamma$  der Doppel- zur Einfachionisation von Helium in Abhängigkeit von der Energie über der Schwelle; convergent-close-coupling (CCC)-Rechnung von Kheifets [7]. Unter der Voraussetzung, daß die Interferenz zwischen beiden Mechanismen vernachlässigbar ist, stellt die Differenz zwischen der „vollen“ CCC-Rechnung und der Shake-off-only Rechnung (hellgrau markierte Fläche) den Anteil des Two-Step-One (dunkelgrau markierte Fläche) an der gesamten Doppelionisation dar.

für die Anfangszustandskorrelation sein, bei der sich das Elektron, das das Photon absorbiert, nicht unmittelbar in der Nähe des Kerns aufhält. Weitere Informationen zu diesem Mechanismus enthält die Literatur [29, 32].

### Die Abhängigkeit der beiden Mechanismen Shake-off und TS1 von der Photon-Energie

Die bildliche Deutung von TS1 und Shake-off erlaubt qualitative Voraussagen über das Wechselspiel der beiden Mechanismen in Abhängigkeit von der absorbierten Photon-Energie: bei niedrigen Energien dominiert der TS1, da für eine Wechselwirkung zwischen beiden Elektronen eine gewisse Zeit benötigt wird, die nur dann gegeben ist, wenn das erste Elektron eine nicht allzu große Geschwindigkeit inne hat und, damit verbunden, eine nicht allzu große Photon-Energie absorbiert hat. Diese Voraussage wird dadurch gestützt, daß nahe an der Schwelle der Anstieg des Wirkungsquerschnittes der Photodoppelionisation mit dem Anstieg des Wirkungsquerschnittes der Einfachionisation von Helium durch Elektronenstoß identisch ist [24]. Im Gegensatz dazu findet der Shake-off bei hohen Energien statt, da hier das erste Elektron das Atom schnell genug verlassen muß, so daß eine schnelle Änderung der effektiven Kernladung erfolgt.

Lange bevor die Photodoppelionisation von Helium koinzident gemessen werden

konnte, wurde das Verhältnis  $R_\gamma$  der Doppel- zur Einfachionisation bestimmt<sup>6</sup>. Da im Bereich hoher Photon-Energie ( $E_\gamma \rightarrow \infty$ ) der TS1 verschwindet und nur noch der Shake-off-Mechanismus wirkt, konnte man durch die experimentelle Bestimmung des Verhältnisses  $R_\gamma = 1,67\%$  [12] Informationen über die Anfangszustandskorrelation und damit über die Korrelationseffekte des gebundenen Atoms erhalten.

Die Bestimmung dieses Verhältnisses  $R_\gamma$  ist jedoch bei hohen Energien größer als 6 keV schwierig, da zu der Photoabsorption noch die Compton-Streuung als weitere Reaktion dazukommt. Durch die Messung des dreidimensionalen Impulsvektors des Heliumions ist es allerdings möglich, die Photoabsorption von der Photon-Streuung zu unterscheiden: Da die Compton-Streuung eine binäre Streuung des Photons an einem Elektron ist, bei der die Energie- und Impulserhaltung nicht verletzt ist, wird kein Impuls auf das Ion übertragen. Der Kern ist quasi „Zuschauer“ bei dieser Reaktion. Nach erfolgter Einfach- oder Doppelionisation trägt das Ion nur einen geringen Impuls. Im Gegensatz dazu findet man beim Shake-off einen großen Ion-Impuls. Durch die Messung des Ion-Impulses ist es möglich, die Ionisation durch Absorption von derjenigen, die durch Compton-Streuung ausgelöst wurde, zu unterscheiden.

Wie man das Verhältnis  $R_\gamma$  der Doppel- zur Einfachionisation von Helium durch Photoabsorption bestimmen kann, so läßt sich das Verhältnis  $R_C$  der Doppel- zur Einfachionisation von Helium durch Compton-Absorption bestimmen. Dieses Verhältnis wurde für  $E_\gamma \rightarrow \infty$  zu  $R_C = 0,84\%$  bestimmt [3]. Dieser Wert liegt niedriger als der der Photo-Absorption. Der Unterschied zwischen  $R_\gamma$  und  $R_C$  liegt daran, daß bei der Photoabsorption die Photonen nur an die Elektronen ankoppeln, die sich nahe am Kern aufhalten<sup>7</sup>; bei der Compton-Streuung können die Photonen an alle Elektronen ankoppeln. Mehr Informationen zur Compton-Streuung und dem Verhältnis von  $R_C$  findet sich in der Literatur [12, 16, 33, 34].

Da man der Photodoppelionisation nur in Grenzfällen einen ganz bestimmten Mechanismus zuordnen kann (nahe an der Schwelle dominiert der TS1, bei sehr hohen Photon-Energien der Shake-off), ist plausibel, daß bei mittleren Energien das Wechselspiel beider Mechanismen für die Photodoppelionisation verantwortlich sein muß. Kheifets hat die Anteile vom TS1 und Shake-off an der Gesamtdoppelionisation in Abhängigkeit von der Energie über der Schwelle berechnet [7]. In Abbildung 2.3, die das Resultat dieser Rechnung zeigt, ist die volle CCC-Rechnung bzgl. des Verhältnisses der Doppel- zur Einfachionisation  $\sigma^{++}/\sigma^+$  zu sehen; die hellgrau unterlegte Fläche zeigt den Anteil des Shake-offs an der Gesamtrechnung. Unter der Annahme, daß keinerlei Interferenz herrscht, läßt sich nun der Anteil des Two-Step-One darstellen, der in der Abbildung dunkelgrau markiert ist.

---

<sup>6</sup>Dazu wurde der Ladungszustand des Rückstoßions ermittelt, der Auskunft darüber gibt, ob es sich bei der Reaktion um eine Einfach- oder eine Doppelionisation gehandelt hat.

<sup>7</sup>Dieses Argument trifft nicht auf den equal-energy-sharing-mechanism zu, da bei diesem Mechanismus der Impulsaustausch zwischen den beiden Elektronen erfolgt und somit der Impuls des Heliumkerns vernachlässigbar sein sollte.

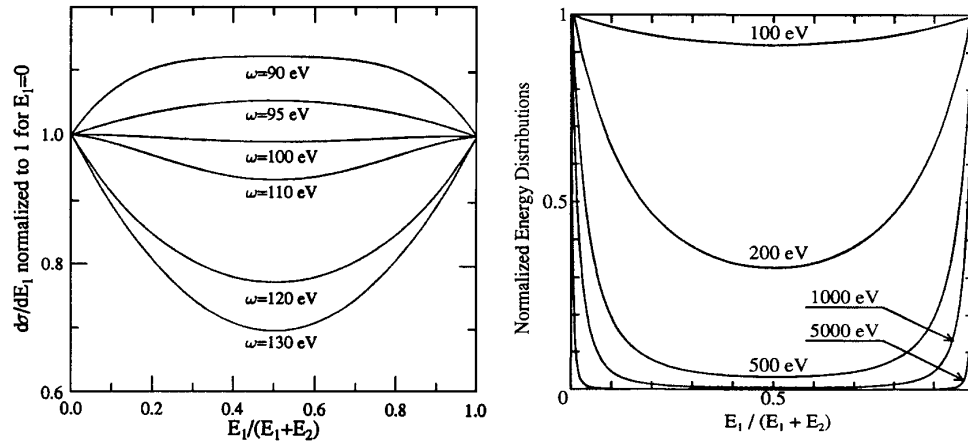


Abbildung 2.4: Einfachdifferentieller Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium als Funktion der Energieaufteilung für verschiedene Photon-Energien; links: Rechnung von Proulx [36], rechts: Rechnung von Hino [35]. Die Rechnungen sind aufeinander normiert.

Die convergent-close-coupling-Rechnung<sup>8</sup> von Kheifets in Abbildung 2.3 ist für alle drei Formen<sup>9</sup> (Längen-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform) gleich. In der Regel gibt es jedoch Abweichungen, wie sie z. B. in der Many-Body-Perturbation-Theory-Rechnung von Hino *et al.* [35] zu sehen sind. Die Größe der Übergangsamplituden in Abhängigkeit von der Photon-Energie unterscheidet sich in wesentlichen Punkten für den Shake-off und den Two-Step-One-Mechanismus innerhalb der drei Formen. Je nach Darstellung treten konstruktive und destruktive Interferenzen zwischen den Übergangsamplituden auf.

### Dominanz von Shake-off und TS1 in Abhängigkeit von der Energieaufteilung

Die jeweilige Dominanz der beiden Mechanismen hängt aber nicht allein von der Photon-Energie ab, sondern auch von der Aufteilung der Energie auf die beiden Elektronen. Der Shake-off produziert entsprechend der obigen Vorstellung vorwiegend langsame<sup>10</sup> Elektronen, während ein (e,2e)-Stoß einen Energieaustausch zwischen den beiden Elektronen ermöglicht. Da der Anteil des Shake-offs mit höherer Photon-Energie zunimmt, liegt die Voraussage nahe, daß bei hohen Photon-Energien der Anteil der sehr langsamen Elektronen höher ist und bei hohen Photon-Energien eine asymmetrische Energieaufteilung vorliegt: Die Wahrscheinlichkeit für das gemeinsame Auftreten eines sehr langsamen und eines sehr schnellen Elektrons ist größer als diejenige für zwei Elektronen mit glei-

<sup>8</sup>Information zur convergent-close-coupling-Rechnung enthält Kapitel 2.6.2.

<sup>9</sup>Informationen zu den drei Formen: Längen-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform sind in Kapitel 2.6 zu finden.

<sup>10</sup>Hier bei ist zu beachten, daß dies nur für  $s^2$ -Wellenfunktionen gilt. Wie in Arbeit [37] gezeigt wird, besteht die Grundzustandswellenfunktion vom Helium-Atom aus  $p^2$ ,  $d^2$  und noch höheren Anteilen. Solche Shake-off-Elektronen hätten weit höhere Energien.

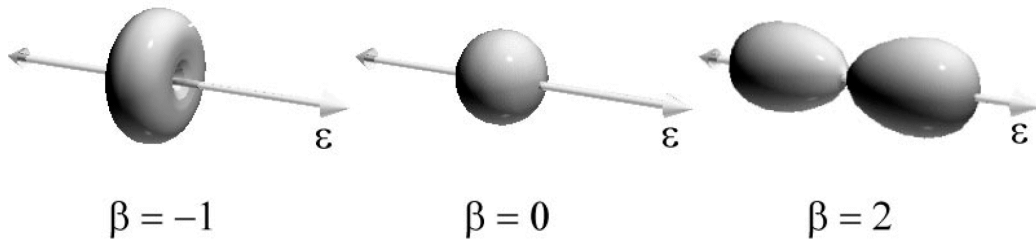


Abbildung 2.5: Häufigkeitsverteilung der Emissionswinkel in Abhängigkeit des Anisotropie( $\beta$ )-Parameters, aus [38]. Bei einem  $\beta$ -Parameter von  $\beta = -1$  werden die Elektronen vorwiegend senkrecht zur Polarisation  $\varepsilon$  emittiert; bei  $\beta = 0$  ist die Verteilung isotrop und  $\beta = 2$  zeigt eine Dipolverteilung.

cher Energie; Rechnungen von Proulx [36] (Abbildung 2.4 links) und Hino [35] (Abbildung 2.4 rechts) lassen dies erwarten. Während nah an der Schwelle gleiche Energieaufteilung bevorzugt auftritt, liegt bei hohen Energien eine asymmetrische Energieaufteilung vor. Die Wahrscheinlichkeit, ein sehr schnelles und ein sehr langsames Elektron zu finden, wobei das sehr langsame Elektron durch den Shake-off ins Kontinuum gelangt, deckt sich mit der Rechnung von Kheifets, daß bei sehr großen Überschußenergien  $E_{exc} > 400$  eV der Anteil des Shake-offs an der Gesamtdoppelionisation dominiert.

### Separation der beiden Mechanismen anhand der Winkelverteilungen der beiden Elektronen

Des weiteren besteht die Annahme, daß die Zwei-Stufen-Natur der beiden Mechanismen sich auch in der Winkelverteilung der Elektronen niederschlägt. Da beiden Mechanismen ein Zwei-Stufen-Prozess zugrunde liegt, in dem zuerst ein Elektron Energie und Drehimpuls des Photons absorbiert und das zweite Elektron entweder durch den Shake-off oder den TS1 ins Kontinuum gelangt, liegt es für den Shake-off nahe, daß die Winkelverteilung des ersten Elektrons in bezug zur Polarisationsachse eine Dipolverteilung entsprechend dem Drehimpuls des Photons von  $L = 1$  aufweist und das zweite Elektron isotrop, bzw. nahezu isotrop abgeschüttelt wird.

Bei dem TS1, bei dem ein (e,2e)-Stoß nicht nur einen Energie-, sondern auch einen Drehimpulsaustausch ermöglicht, erwartet man eine Winkelemission für die beiden Elektronen, die ungleich der vom Shake-off ist.

Für die Darstellung der Emissionswinkel der Elektronen in bezug auf die Polarisationsachse verwendet man in der Literatur den Anisotropie-Parameter, der auch  $\beta$ -Parameter genannt wird.

#### 2.2.2 $\beta$ -Parameter

Im Fall von vollständig linear polarisiertem Licht läßt sich der doppeldifferentielle Wirkungsquerschnitt nach [39] darstellen:

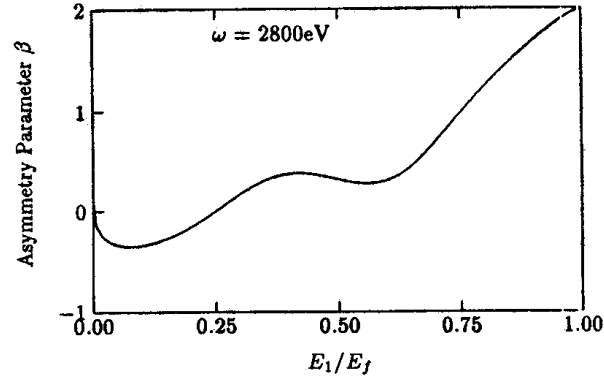


Abbildung 2.6: Anisotropie-Parameter in Abhängigkeit von der Energieaufteilung für eine Photon-Energie  $E_\gamma = 2800$  eV ( $\omega$  ist hier die Abkürzung für Photon-Energie), Rechnung von Teng und Shakeshaft, aus [8].

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{d\sigma}{dE} \frac{1}{4\pi} \left[ 1 + \beta(E) \left( \frac{3}{2} \cos^2 \vartheta - \frac{1}{2} \right) \right]. \quad (2.2)$$

$\beta$  kann hierbei kontinuierliche Werte zwischen  $-1$  und  $+2$  annehmen. Dabei bedeutet z.B.:

- $\beta = 0$ : isotrope Verteilung
- $\beta = -1$ : Torus-förmige Verteilung um die Polarisationsachse herum
- $\beta = +2$ : Dipolverteilung entlang der Polarisationsachse

Abbildung 2.5 zeigt eine graphische Anschauung der Emissionswinkel in Abhängigkeit vom Anisotropie-Parameter.

Für die Voraussage bezüglich der Winkelverteilung beim Shake-off heißt dies, daß nach der vereinfachten Vorstellung das schnelle Elektron einen Anisotropie-Parameter von  $\beta = 2$  und das langsame Elektron ein  $\beta = 0$  haben muß. Abbildung 2.6 zeigt eine Rechnung von Teng und Shakeshaft [8] bzgl. des Anisotropie-Parameters für eine Photon-Energie von 2800 eV, die die naheliegende Voraussage untermauert, daß sehr langsame Elektronen isotrop emittiert werden, während die Winkelemission von sehr schnellen Elektronen eine Dipolstruktur zeigt.

### Überprüfung der theoretischen Überlegungen zur Dominanz beider Doppelionisationsmechanismen

Die Überlegungen zur Dominanz der beiden Mechanismen in Abhängigkeit der Photon-Energie und der Energieaufteilung stellen hier nur ein theoretisches Modell dar. Es ist daher das Ziel, diese Modelle durch Experimente zu bestätigen oder zu verwerfen. Eine Unterscheidung der beiden Mechanismen setzt voraus, daß man beide Elektronen separieren kann, in ein „erstes“, sehr schnelles Elektron, was die Energie und den Drehimpuls



des Photons absorbiert und in ein „zweites“, langsames Elektron, das entweder durch den Shake-off oder den TS1 ins Kontinuum gelangt. Des weiteren muß die Messung der Photodoppelionisation die gesamte kinematische Information des Endzustandes beinhalten, um Untersuchungen zur Energieaufteilung, zur Emission der beiden Elektronen in bezug zur Polarisationsachse und zur Verteilung der Zwischenwinkel beider Elektronen anstellen zu können. Diese gesamte kinematische Information ist durch die neun Impuls-komponenten der drei Teilchen im Endzustand gegeben. Aufgrund von Impuls- und Energieerhaltung sind aber nur fünf linear unabhängig. Um also die gesamte kinematische Information des Endzustandes zu kennen, müssen fünf Impulskomponenten<sup>11</sup> und damit der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt (5DCS) gemessen werden. Dieser heißt auch vollständig differentiell, da er die gesamte Information des Endzustandes beinhaltet (siehe Kapitel 1, Gleichung 1.2 für den fünffachdifferentiellen und Gleichung 1.3 für den vierfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitt). Innerhalb der Dipol-Näherung beinhaltet dieser vierfachdifferentielle Wirkungsquerschnitt die gesamte kinematische Information der Photodoppelionisation von Helium.

Bis zur Durchführung der hier vorgestellten Messung waren nur Ergebnisse zu  $(\gamma, 2e)$ -Experimenten direkt von der Schwelle bis zu einer Energie von 60 eV über der Schwelle publiziert [40, 6, 41, 42, 43, 40, 44, 45, 46, 47, 48]. Bis jetzt war es deshalb nicht möglich, Aussagen zur Dominanz von Shake-off und TS1 zu machen. Ziel dieser Arbeit ist es daher, den vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitt bei höheren Photon-Energien zu messen; mit diesem lassen sich die Annahmen zur Energieaufteilung und Winkelverteilung der beiden Elektronen untersuchen, um so Informationen über die beiden Doppelionisationsmechanismen zu gewinnen.

### 2.2.3 Auswahlregeln

1993 wurde das erste  $(\gamma, 2e)$ -Experiment an Helium von Schwarzkopf *et al.* [49] bei einer Energie von 20 eV über der Schwelle durchgeführt. Schon bei dieser ersten Messung wurde eine Auswahlregel experimentell bestätigt. Als Auswahlregel bezeichnet man bestimmte Geometrien der beiden Elektronen in Relation zum Polarisationsvektor, bei denen der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt aufgrund der  $^1P_1$ -Symmetrie verschwindet. Im folgenden werden die Auswahlregeln der Photodoppelionisation erläutert, wobei die Nomenklatur aus der Arbeit von Maulbetsch und Briggs [50] verwendet wird:

- **Auswahlregel A:** In der Photodoppelionisation ist der Wirkungsquerschnitt gleich Null, wenn beide Elektronen senkrecht zum Polarisationsvektor emittiert werden. Dies ist eine Konsequenz aus dem Übergang vom  $^1S_0$ -Zustand in einen  $^1P_1$ -Zustand. Bei Emission von beiden Elektronen senkrecht zur Polarisationsachse ist der Endzustand mit  $L = 1$  und  $M = 0$  (wobei  $L$  den Gesamtdrehimpuls und  $M$  die Projektion des Drehimpulses auf die Quantisierungsachse bezeichnet) nicht

---

<sup>11</sup>Dem Experimentator bleibt es überlassen, welche fünf der insgesamt neun Impulskomponenten er mißt.

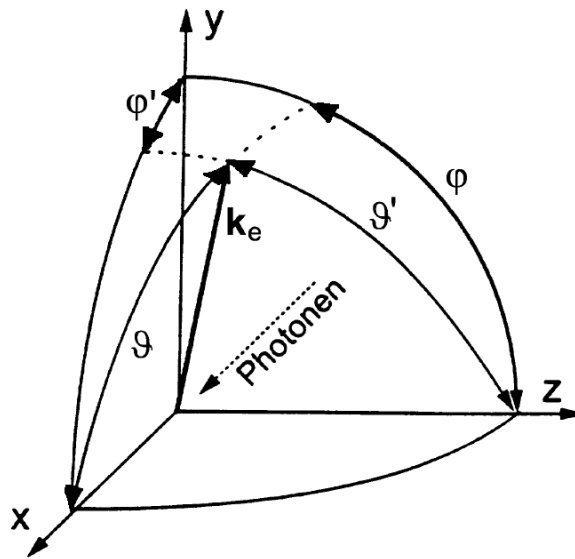


Abbildung 2.7: Polarkoordinatensysteme für linear und für zirkular polarisiertes Licht. Die Lichtausbreitung verläuft entlang der x-Achse. Die ungestrichenen Variablen gelten für zirkular polarisiertes Licht, die gestrichenen für linear polarisiertes Licht. Die z-Achse ist bei linear polarisiertem Licht parallel zum Polarisationsvektor.  $k_e$  kennzeichnet den Impulsvektor eines Elektrons. Abbildung aus [38].

gewährleistet. Diese Auswahlregel gilt für alle Energieaufteilungen zwischen den beiden Elektronen.

- **Auswahlregel C** besagt, daß der Wirkungsquerschnitt Null ist, wenn beide Elektronen bei gleicher Energieaufteilung back-to-back gehen, d.h., wenn  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  ist. Dieses Verhalten kann man folgendermaßen erklären: Der Heliumgrundzustand hat gerade Parität; durch den Photonenimpuls erhält der Endzustand ungerade Parität. Diese ungerade Parität ist aber nicht gewährleistet, wenn  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  ist. Da diese Auswahlregel unabhängig von der Polarisation ist, ist sie auch bei der Photo-doppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht gültig.
- **Auswahlregel F** besagt, daß der Wirkungsquerschnitt bei gleicher Energieaufteilung Null ist, wenn  $\vartheta_2 = 180^\circ - \vartheta_1$  ist.
- Neben diesen durch die  $^1P_1$  Symmetrie verursachten Auswahlregeln, gibt es eine weitere, die aus der Abstoßung der elektrisch gleich geladenen Elektronen resultiert: Der Wirkungsquerschnitt ist Null, wenn beide Elektronen bei gleicher Energieaufteilung in die gleiche Richtung fliegen.

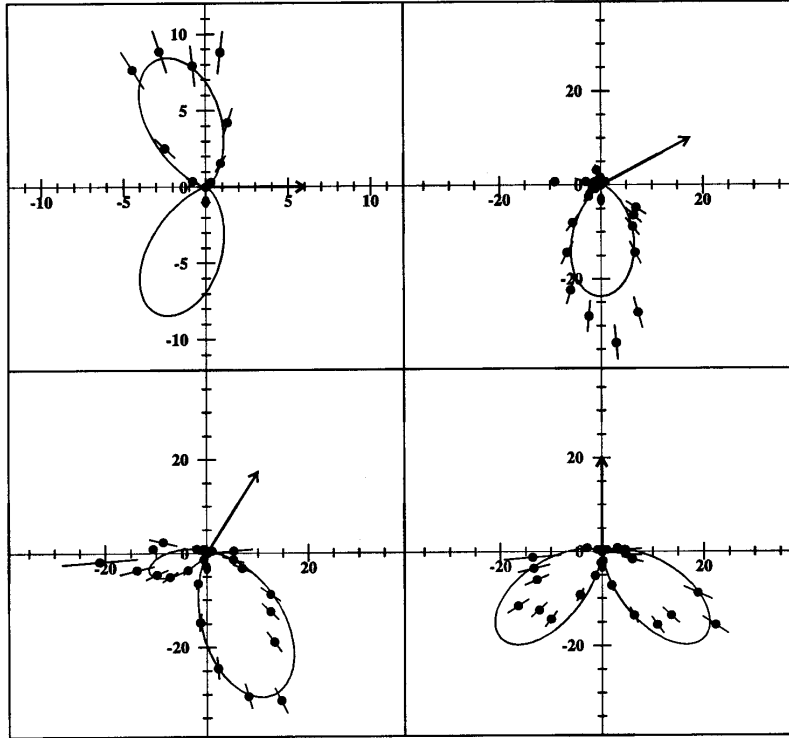


Abbildung 2.8: 5DCS auf absoluter Skala in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$  für gleiche Energieaufteilung und verschiedene Emissionswinkel  $\vartheta_1$  zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor, der in der Abbildung horizontal ausgerichtet ist.  $\vartheta_1$  nimmt die Werte  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$  und  $90^\circ$  an; aus [42].

### Die Winkelverteilungen der beiden Elektronen in koplanarer Ebene als mögliche Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnittes

Für die Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnittes werden häufig Winkeldarstellungen genommen. Bei diesen Darstellungen wird die Energieaufteilung der beiden Elektronen und die sphärischen Polarkoordinaten für die Richtungen der beiden Elektronen verwendet. Die Bezugsachse für die Polarkoordinaten ist für linear polarisiertes Licht der Polarisationsvektor und für zirkular polarisiertes Licht die Photonen-ausbreitungsrichtung (Abbildung 2.7). Außerdem werden die Symmetrien im Endzustand ausgenutzt. Innerhalb der Dipolnäherung ist bei linear polarisiertem Licht die Polarisationsachse die Symmetrieachse. Damit reduziert sich der fünffach differentielle innerhalb der Dipolnäherung zu einem vierfach differentiellen Wirkungsquerschnitt. Innerhalb der Dipolnäherung hängt der 4DCS von den Polarwinkeln beider Elektronen  $\vartheta_1$ ,  $\vartheta_2$  relativ zur Polarisations- bzw. Photonen-ausbreitungsrichtung, sowie von den azimuthalen Zwischenwinkeln  $\varphi_{12} = \varphi_1 - \varphi_2$  ab. Für die Winkelverteilung der beiden Elektronen bei der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht hat die Ausnutzung des Polarisationsvektors als Symmetrieachse den Vorteil, daß der Impulsvektor  $\vec{p}_1$  eines Elektrons mit einem definierten Winkel von  $\vartheta_1$  über den kompletten Azimutalwinkel von  $2\pi$  integriert werden kann. Dieses Elektron mit einer festen Energie von  $E_1$  wird nachfolgend als

„festgehaltenes“ Elektron bezeichnet.

Häufig verwendete Geometrien sind:

- Für linear polarisiertes Licht: Polarisationsvektor und die Impulse beider Elektronen liegen in einer Ebene; koplanare Geometrie mit  $\varphi_{12} = 0$  oder  $180^\circ$ ; aufgetragen ist  $\vartheta_2$  für festgehaltenes  $\vartheta_1$  (siehe Abbildung 2.8)
- Für zirkular polarisiertes Licht: Die Impulsvektoren beider Elektronen liegen in einer Ebene, die sich senkrecht zur Ausbreitungsrichtung befindet, also  $\vartheta_1 = \vartheta_2 = 90^\circ$ ; aufgetragen wird  $\varphi_{12}$ .

Abbildung 2.8 dient als Beispiel für eine solche Winkelverteilung: Die Winkelverteilung eines 10 eV Elektrons für linear polarisiertes Licht bei 20 eV über der Schwelle. Für die Darstellung wurde der Polarwinkel  $\vartheta_1$  des festgehaltenen Elektrons zum Polarisationsvektor variiert:  $\vartheta_1 = 0^\circ, 30^\circ, 60^\circ$  und  $90^\circ$ . Die Darstellungen zeigen die Winkelverteilung des komplementären Elektrons zum festgehaltenen Elektron in koplanarer Geometrie. Hierbei ist zu beachten, daß die  $\vartheta_1$ -Polarwinkel und die Elektronenenergien  $E_1$  bzw.  $E_2$  nur Mittelwerte sind. Tatsächlich betragen die zur Abbildung gehörenden Elektronenenergien  $E_1 = 10 \text{ eV} \pm \Delta E$  mit  $\Delta E = 4 \text{ eV}$ ; entsprechendes gilt für die Emissionswinkel:  $\Delta\vartheta_1 = 20^\circ$  und  $\Delta\phi = 20^\circ$  [42]. Dieses Vorgehensweise ist notwendig, da sonst nur ein unzureichender, nicht aussagekräftiger Statistikumfang vorhanden wäre. Andererseits muß darauf geachtet werden, daß durch eine Integration über die Energie und die Winkel der dargestellte vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt nicht verfälscht wird<sup>12</sup>. Diese Energie- und Winkelintegration muß später bei der Normierung der Daten für die Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts berücksichtigt werden. Die Winkelverteilungen für  $\vartheta_1 = 0^\circ, 60^\circ$  und  $90^\circ$  lassen die Auswahlregel C gut erkennen, nach der der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt bei gleicher Energieaufteilung für back-to-back-Emission Null ist.

## 2.3 Die Photodoppelionisation nahe an der Schwelle als Geltungsbereich der Wannier-Näherung

Die Photodoppelionisation nahe an der Schwelle liegt im Geltungsbereich der sogenannten Wannier-Näherung [51]. Im folgenden soll die Wannier-Näherung beschrieben werden. Hierzu ist es nützlich, den Prozeß in Jacobi-Schwerpunktkoordinaten (Abbildung 2.9) statt in Einteilchen-Koordinaten  $\vec{p}_1, \vec{p}_2$  zu beschreiben:

---

<sup>12</sup>Diese Verfälschung kann sich z.B. darin äußern, daß innerhalb der Dipolnäherung die Auswahlregeln in den Winkelverteilungen nicht mehr sichtbar sind. Das ist dann der Fall, wenn die Grenzen bei der Integration über die Energie und/oder die Winkel zu groß gewählt wurden. In der Praxis wählt man die Integration gerade so, daß ein minimaler Statistikumfang vorhanden ist, so daß einerseits der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt nicht verfälscht wird, andererseits genug Daten vorhanden sind, um eine physikalische Aussage machen zu können.

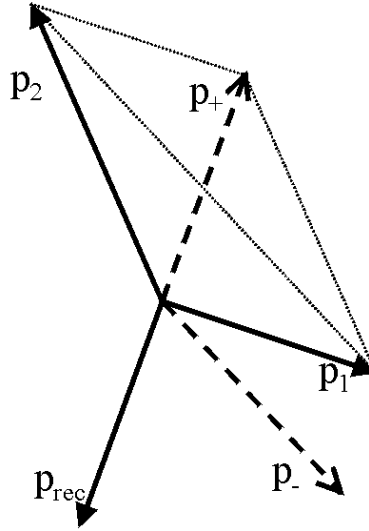


Abbildung 2.9: Darstellung der Schwerpunktskoordinaten. Mit  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$  sind die beiden Elektronenimpulse bezeichnet, mit  $\vec{p}_{rec}$  der Impuls des Rückstoßions. Der Summenimpuls ist  $\vec{p}_+ = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$ , der Relativimpuls beider Elektronen ergibt sich zu  $\vec{p}_- = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$ .

- Der Schwerpunktsimpuls des Elektronenpaares ist definiert durch  $\vec{p}_+ = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$ , wobei  $-\vec{p}_+$  der Impuls des Rückstoßions ist.
- Der Relativimpuls der beiden Elektronen ist gegeben durch  $\vec{p}_- = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$ .
- Die Überschußenergie ergibt sich damit zu  $E_{exc} = E_+ + E_-$  mit  $E_+ = p_+^2/4$  und  $E_- = p_-^2$ .

Bei diesem Drei-Teilchen-Aufbruch von Helium nahe an der Schwelle wird die Anordnung der Teilchen in einer Linie bevorzugt, wobei der doppelt geladene Heliumkern sich im Sattelpotential zwischen beiden Elektronen befindet, während die beiden Elektronen mit nahezu gleicher Energieaufteilung auseinanderlaufen. Der Grenzfall, daß der Heliumkern im Sattelpotential ruht und die beiden Elektronen mit gleicher Energieaufteilung back-to-back emittiert werden, kann nach der Auswahlregel C jedoch nicht eintreten.

Experimentell [5, 53] konnte bestätigt werden, daß eine kleine Überschußenergie in die Relativbewegung der Elektronen geht und die Kernbewegung auf dem Sattelpotential der beiden Elektronen ausfriert ( $E_+ \ll E_-$ ). Zusätzlich zeigt sich, daß die Kernbewegung ihr Maximum parallel zur Polarisation ( $\beta_+ > 0$ ) hat, während das Elektronenpaar hauptsächlich senkrecht zur Polarisation aufbricht ( $\beta_- < 0$ ). Dies läßt sich damit begründen, daß eine Oszillation des Kerns parallel zur Relativbewegung der beiden Elektronen zu einer Rekombination führen würde, was einer Photoeinfachionisation gleichkäme [51, 54, 55, 56, 57, 58]. Abbildung 2.10 dient der Veranschaulichung dieses Sachverhaltes.

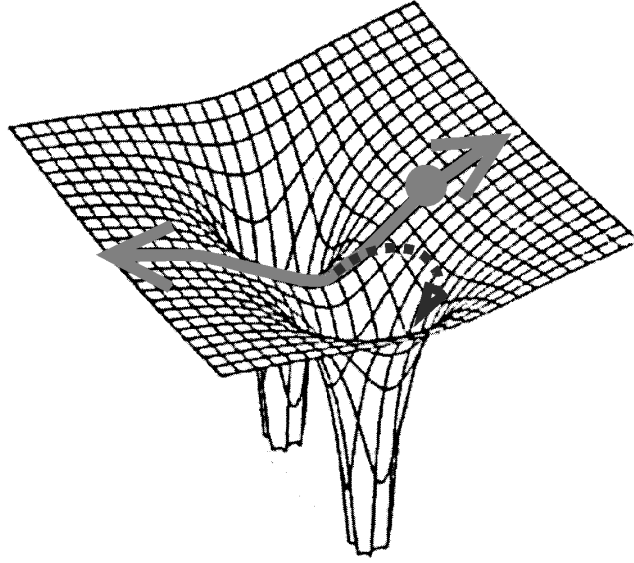


Abbildung 2.10: Schwingung des Heliumkerns im Sattelpotential der beiden Elektronen, teilweise aus [52]: Die Schwingung (graue Kurve) erfolgt dabei senkrecht zum Aufbruch der beiden Elektronen. Der graue Kreis gibt eine mögliche Position des Kerns im Sattelpotential an. Würde der Kern parallel zum Elektronenaufbruch verlaufen (schwarz gestrichelte Linie), so fiel der Kern in den Potentialtopf eines der beiden Elektronen.

Der bevorzugte Aufbruch des Elektronen-Paares senkrecht zur Polarisationsachse für kleine Überschußenergien kann des weiteren verstanden werden, indem man das Helium-Atom im molekularen Bild betrachtet [59]. Dabei wird die interelektronische Achse  $\vec{r}_- = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$  als Molekülachse betrachtet; des weiteren ist  $m$  die Projektion des Gesamtdrehimpulses auf  $\vec{r}_-$ . Neben  $m$  gibt es die Quantenzahl  $t = 0$  bzw.  $t = 1$ , die die interne Parität unter Austausch von  $r_+ \rightarrow -r_+$  beschreibt, wobei  $\vec{r}_+$  die Position des elektronischen Schwerpunktes relativ zum Kern angibt.  $(-1)^t$  beschreibt demnach das Verhalten der Wellenfunktion unter dem Austausch  $\vec{r}_+ \rightarrow -\vec{r}_+$ .

In diesem Bild ist der Heliumgrundzustand ein molekularer  $\sigma_g$ -Zustand ( $m = 0$  und  $t = 0$ ). Auswahlregeln erlauben einen Übergang in einen  $\sigma_u$  ( $m = 0$  und  $t = 1$ ) oder einen  $\pi_u$  ( $m = 1$  und  $t = 1$ ) Zustand. Eine Neigungsregel<sup>13</sup>, die empirisch in doppelt angeregten Heliumzuständen gefunden wurde und auch nahe der Doppelionisationschwelle erfüllt ist [5, 53], besagt, daß die Parität  $A := (-1)^{t+m}$  vor ( $A_i$ ) und nach ( $A_f$ ) dem Übergang gleich ist:

$$A_i - A_f = \Delta((-1)^{t+m}) \cong 0. \quad (2.3)$$

Da  $A_i = (-1)^{t+m} = (-1)^{0+0} = 1$  ist, sind Endzustände mit  $A_f = 1$  bevorzugt. Da durch die Photonabsorption und die damit verbundene negative Parität  $t = 1$  ist, muß  $m = 1$  sein, damit  $A_f = 1$  erfüllt ist.

<sup>13</sup>Im Gegensatz zu Auswahlregeln sind Neigungsregeln nur näherungsweise erfüllt.

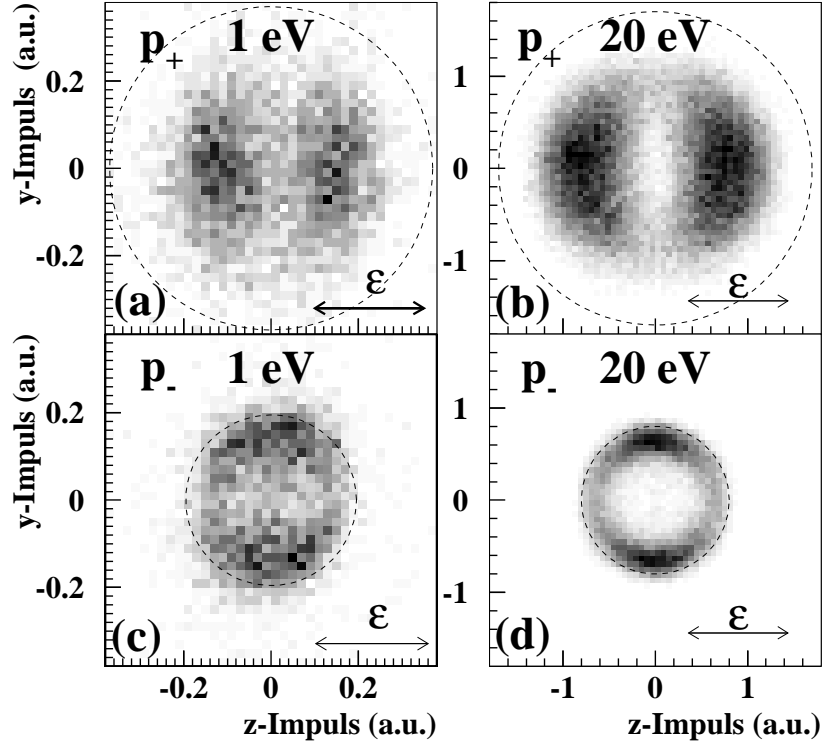


Abbildung 2.11: Impulsverteilung der Photodoppelionisation von Helium 1 eV und 20 eV über der Schwelle in Jacobi-Impulsen, die Daten für 1 eV in (a) und (c), die für 20 eV in (b) und (d). Dargestellt ist der Summenimpuls  $\vec{p}_+$  in (a) und (b); der Relativimpuls  $\vec{p}_-$  ist in (b) und (d) zu finden. Die Polarisationsachse ist in allen Abbildungen horizontal. Der äußere Kreis gennzeichnet den maximal möglichen Impuls; aus [5, 53].

Neben den Impulsen kann auch der Anisotropie-Parameter in molekularen Koordinaten angegeben werden [52]. Der  $\beta$ -Parameter ist

- für reine  $m = 0$ -Zustände:  $\beta_+ = 4/5$ ;  $\beta_- = 2$
- und für reine  $m = 1$ -Zustände:  $\beta_+ = 7/5$ ;  $\beta_- = -1$

Daten für 1 eV [5] und 20 eV [53] über der Schwelle bestätigen die Dominanz für  $m = 1$  (Abbildung 2.11). Einer der Untersuchungsgegenstände dieser Arbeit ist auch die Frage, bei welcher Überschußenergie diese Neigungsregel nicht mehr zutrifft.

## 2.4 Zirkularer Dichroismus

Ein Objekt ist chiral, wenn es nicht identisch mit seinem Spiegelbild ist, oder genauer: ein chirales Objekt läßt sich nicht durch Rotation und/oder Translation in sein Spiegelbild überführen. Chiralität tritt nicht nur in Ionisationsprozessen mit komplexen Molekülen und spinpolarisierten Atomen auf, sondern kann auch in der Photodoppelionisation von

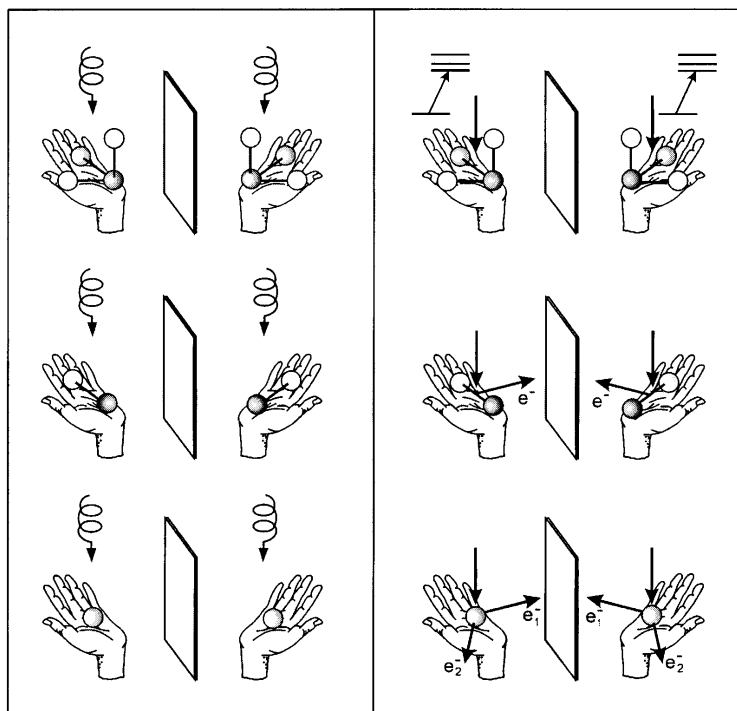


Abbildung 2.12: Händigkeit des Anfangszustandes (links) und des Endzustandes (rechts). Absorption von zirkular polarisiertem Licht durch: Anregung eines chiralen Moleküls (oben), Einfachionisation eines ausgerichteten Atoms (mitte) und Doppelionisation eines sphärisch symmetrischen Atoms (unten), aus [38].

einem sphärisch symmetrischen, nicht spinpolarisierten Helium-Atom mit zirkular polarisiertem Licht beobachtet werden.

1992 haben Berakdar und Klar [60, 61] vorhergesagt, daß man Chiralität in der Photo-doppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht finden kann: Der axiale Vektor des rotierenden elektrischen Feldes und die Impulse der beiden Elektronen führen zu einer „Händigkeit“ (siehe Abbildung 2.12), wenn die folgenden Bedingungen erfüllt sind:

- beide Elektronen sind unterscheidbar ( $E_1 \neq E_2$ ,  $E_1$  und  $E_2$  sind jeweils die Energien von Elektron 1 und Elektron 2)
- die Impulse beider Elektronen  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$  dürfen nicht parallel oder antiparallel sein ( $\vec{p}_1 \not\parallel \pm \vec{p}_2$ )
- beide Elektron-Impulsvektoren und der Impuls des Lichtes  $\vec{k}$  dürfen nicht in einer Ebene liegen ( $\vec{p}_1 \times \vec{p}_2 = \vec{n}$  und  $\vec{n}$  nicht  $\perp \vec{k}$ )

Der axiale Vektor des rotierenden elektrischen Feldes und die beiden Elektron-Impulse müssen ein rechtshändiges oder linkshändiges Dreibein aufspannen. Ein Maß der Chiralität ist der sogenannte „Zirkulare Dichroismus“. In der Literatur gibt es zwei leicht unterschiedliche Definitionen des Zirkularen Dichroismus:



- der (unnormierte) Zirkulare Dichroismus

$$\text{CD}(E_1, E_2, \vartheta_1, \vartheta_2, \varphi_{12}) = 5\text{DCS}_{\sigma^+} - 5\text{DCS}_{\sigma^-} \quad (2.4)$$

- der normierte Zirkulare Dichroismus  $\text{CD}_n$ :

$$\text{CD}_n(E_1, E_2, \vartheta_1, \vartheta_2, \varphi_{12}) = \frac{5\text{DCS}_{\sigma^+} - 5\text{DCS}_{\sigma^-}}{5\text{DCS}_{\sigma^+} + 5\text{DCS}_{\sigma^-}} \quad (2.5)$$

$E_1$  und  $E_2$  stehen für die Energien von beiden Elektronen,  $\vartheta_1$  und  $\vartheta_2$  sind die in Abbildung 2.7 eingeführten Polarkoordinaten der beiden Elektronen zur Lichtausbreitungsrichtung.  $5\text{DCS}_{\sigma^+}$  und  $5\text{DCS}_{\sigma^-}$  sind die fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitte der Photodoppelionisation von Helium mit rechts und links zirkular polarisiertem Licht. Um die Stärke des Zirkularen Dichroismus für verschiedene Energieaufteilungen und verschiedene Photon-Energien miteinander zu vergleichen, ist  $\text{CD}_n$  besser geeignet, da der Quotient aus der Differenz von  $5\text{DCS}_{\sigma^+}$  und  $5\text{DCS}_{\sigma^-}$  zur Summe von beiden unabhängig von der Größe des differentiellen Wirkungsquerschnitts ist.

Um den Zirkularen Dichroismus  $\text{CD}$  oder den normierten Zirkularen Dichroismus  $\text{CD}_n$  der  $5\text{DCS}$  der Photodoppelionisation von Helium zu studieren, ist also zirkular polarisiertes Licht erforderlich. Prinzipiell wird aber aufgrund der Symmetrieeigenschaften nur der  $5\text{DCS}$  von links oder der von rechts zirkular polarisiertem Licht benötigt [62]:

$$5\text{DCS}_{\sigma^+}(E_1, E_2, \vartheta_1, \vartheta_2, \varphi_{12}) = 5\text{DCS}_{\sigma^-}(E_1, E_2, \vartheta_1, \vartheta_2, 360^\circ - \varphi_{12}) \quad (2.6)$$

Mißt man allerdings beide  $5\text{DCS}$ , so besteht unter Ausnutzung von Gleichung 2.6 die Möglichkeit, einen ersten rudimentären Konsistenz-Check durchzuführen. In Kombination mit Gleichung 2.5 zeigt sich, daß der Zirkulare Dichroismus punktsymmetrisch um  $\varphi_{12} = 180^\circ$  ist.

Das erste ( $\gamma, 2e$ )-Experiment bezüglich des Zirkularen Dichroismus wurde 1996 von Viefhaus *et al.* [63] bei einer Energie  $E_{exc} = 14,5$  eV über der Schwelle durchgeführt. Der  $\text{CD}_n$  ist für die drei verschiedenen Winkel  $\varphi_{12} = 85^\circ, 125^\circ$  und  $150^\circ$  und für fünf unterschiedliche Energieaufteilungen gemessen worden. Danach wurden nur wenige Experimente mit zirkular polarisiertem Licht bei folgenden Energien durchgeführt:  $E_{exc} = 9, 20$  und  $60$  eV [64, 65, 66, 67].

Bei  $E_{exc} = 20$  eV ist ein maximaler Zirkularer Dichroismus bei  $\text{CD}_{n,max} = 0,7$  zu finden [64]. Untersuchungsgegenstand ist die Frage, wie sich der Zirkulare Dichroismus bzgl. des Zwischenwinkels beider Elektronen verhält und wie groß der Zirkulare Dichroismus bei  $100$  eV und  $450$  eV ist. Nach J. Berakdar nimmt nämlich  $\text{CD}_n$  nahe an der Schwelle ( $E_{exc} \rightarrow 0$ ) mit  $\sqrt{E_{exc}}$  ab und ist proportional zu  $\sqrt{1/E_{exc}}$  für hohe Photon-Energien ( $E_{exc} \rightarrow \infty$ ) [62]. Folglich sollte  $\text{CD}_n$  für  $E_{exc} \rightarrow \infty$  gegen Null gehen.

Im folgenden Kapitel wird gezeigt, daß der Zirkulare Dichroismus nicht einfach nur die Differenz beider Wirkungsquerschnitte ist; ihm kommt eine besondere Bedeutung bzgl. der Dynamik der beiden Elektronen zu.

## 2.5 Parametrisierung des Übergangsmatrixelementes

Ziel einer Parametrisierung ist, den fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitt, der eine reelle Funktion im  $R^5$ -Raum ist, als Funktionen in einem niedriger dimensionalen Raum zu beschreiben. Für den Geltungsbereich der Dipolnäherung wurde eine erfolgreiche Parametrisierung von Huetz *et al.* [9] und Malegat *et al.* [10] vorgeschlagen. Durch diese Parametrisierung ist es nicht nur möglich, den 5DCS als Summe und Produkt von drei Funktionen im  $R^2$ -Raum darzustellen, vielmehr liegt der Erfolg dieser Parametrisierung in einer Separation der  $^1P_1$ -Symmetrie und den dynamischen Parametern. Diese Separation erlaubt eine detailliertere Untersuchung der Dynamik beider Elektronen.

### 2.5.1 Parametrisierung für linear polarisiertes Licht

Innerhalb der Dipolnäherung läßt sich der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt folgendermaßen darstellen:

$$5\text{DCS} = \frac{d^5\sigma}{dE_1 d\cos\vartheta_1 d\cos\vartheta_2 d\varphi_1 d\varphi_2} = |a_g(\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2) + a_u(\cos\vartheta_1 - \cos\vartheta_2)|^2 \quad (2.7)$$

$\vartheta_1$  und  $\vartheta_2$  sind die Emissionswinkel der beiden Elektronen in bezug auf die Polarisationsachse.  $a_g$  und  $a_u$  sind komplexe Funktionen und hängen von der Energie der beiden Elektronen  $E_1$ ,  $E_2$  und dem Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  ab. Hierbei ist  $\vartheta_{12} \neq \vartheta_1 - \vartheta_2$ , sondern der Zwischenwinkel im dreidimensionalen Raum.  $g$  und  $u$  steht für gerade und ungerade mit Bezug auf die Permutation von  $E_1$  und  $E_2$ :  $a_g(E_1, E_2, \vartheta_{12}) = a_g(E_2, E_1, \vartheta_{12})$  und  $a_u(E_1, E_2, \vartheta_{12}) = -a_u(E_2, E_1, \vartheta_{12})$ .

In Gleichung 2.7 sind  $(\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2)$  und  $(\cos\vartheta_1 - \cos\vartheta_2)$  die geometrischen Faktoren, die die  $^1P_1$  Symmetrie reflektieren, die Amplituden  $a_g$  und  $a_u$  sind die dynamischen Parameter. Die Vorteile dieser Parametrisierung liegen auf der Hand: Einerseits wurde eine Datenreduktion ohne Informationsverlust erreicht, andererseits läßt sich der Drei-Teilchen-Aufbruch detailliert studieren.

$$\begin{aligned} 5\text{DCS} &= |a_g|^2 (\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2)^2 + |a_u|^2 (\cos\vartheta_1 - \cos\vartheta_2)^2 \\ &\quad + 2(\cos^2\vartheta_1 - \cos^2\vartheta_2)\text{Re}\{a_g a_u^*\} \\ &= |a_g|^2 (\cos\vartheta_1 + \cos\vartheta_2)^2 + |a_u|^2 (\cos\vartheta_1 - \cos\vartheta_2)^2 \\ &\quad + 2(\cos^2\vartheta_1 - \cos^2\vartheta_2) |a_g| |a_u| \cos\Phi. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Gleichung 2.8 läßt erkennen, daß die volle Information des fünfdimensionalen Phasenraums nur drei Funktionen, die jeweils von zwei Parametern - der Energieaufteilung und dem Zwischenwinkel - abhängen, nötig sind. Der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht ist allein von

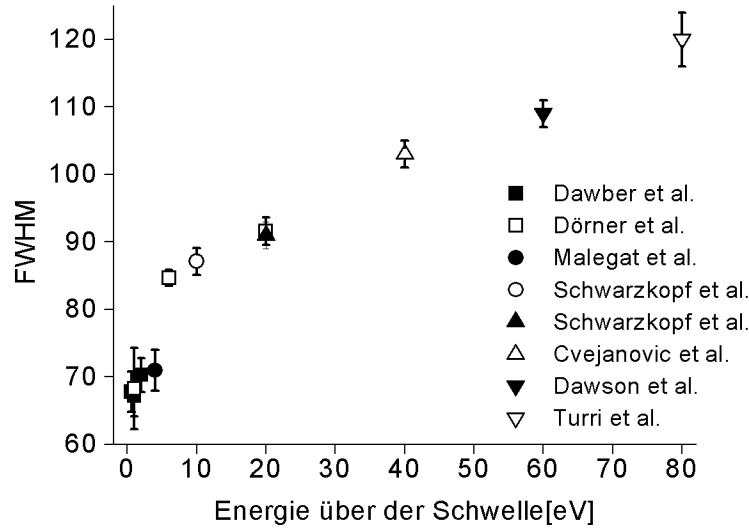


Abbildung 2.13: Experimentell bestimmte Korrelationsweite in Winkelgrad gegen die Energie über der Schwelle; Dawber *et al.* [40], Dörner *et al.* [6], Malegat *et al.* [69], Schwarzkopf *et al.* [49] (offene Kreise), Schwarzkopf *et al.* [70] (gefüllte Dreiecke), Cvejanovic *et al.* [71], Dawson *et al.* [72], Turri *et al.* [73].

den Beträgen  $|a_g|$ ,  $|a_u|$  und dem Cosinus der Phase<sup>14</sup>  $\Phi$  zwischen beiden Amplituden abhängig.

### Gleiche Energieaufteilung $E_1 = E_2$

Um die Vorteile dieser Parametrisierung zu zeigen, wird im folgenden die Bedingung herausgegriffen, daß beide Elektronen die gleiche Energie haben. Dann vereinfacht sich Gleichung 2.8 zu Gleichung 2.9, da für gleiche Energieaufteilung die ungerade Amplitude  $a_u = 0$  wird.

$$5\text{DCS} \Big|_{E_1=E_2} = |a_g|^2 (\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2)^2. \quad (2.9)$$

Wegen dieser Einfachheit haben verschiedene Experimental-Gruppen das Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  für  $E_1 = E_2$  und für Energien von  $E_{exc} = 0,6$  eV bis 80 eV [49, 70, 40, 73, 6] extrahiert.

Alle experimentell extrahierten Quadrate der geraden Amplituden<sup>15</sup>  $|a_g|^2$  zeigen eine Gauß'sche Glockenkurve mit einem Maximum bei  $180^\circ$ . Diese Gauß'sche Verteilung der

<sup>14</sup>Die Phase einer Zwei-Teichen-Wellenfunktion im Anfangszustand wurde von J. Berakdar und N. Kabachnik hergeleitet [68].

<sup>15</sup>Im Falle gleicher Energieaufteilung wird  $|a_g|^2$  auch Korrelationsfaktor genannt, da die gesamte Information der Elektronen-Dynamik im Quadrat der geraden Amplitude zu finden ist.

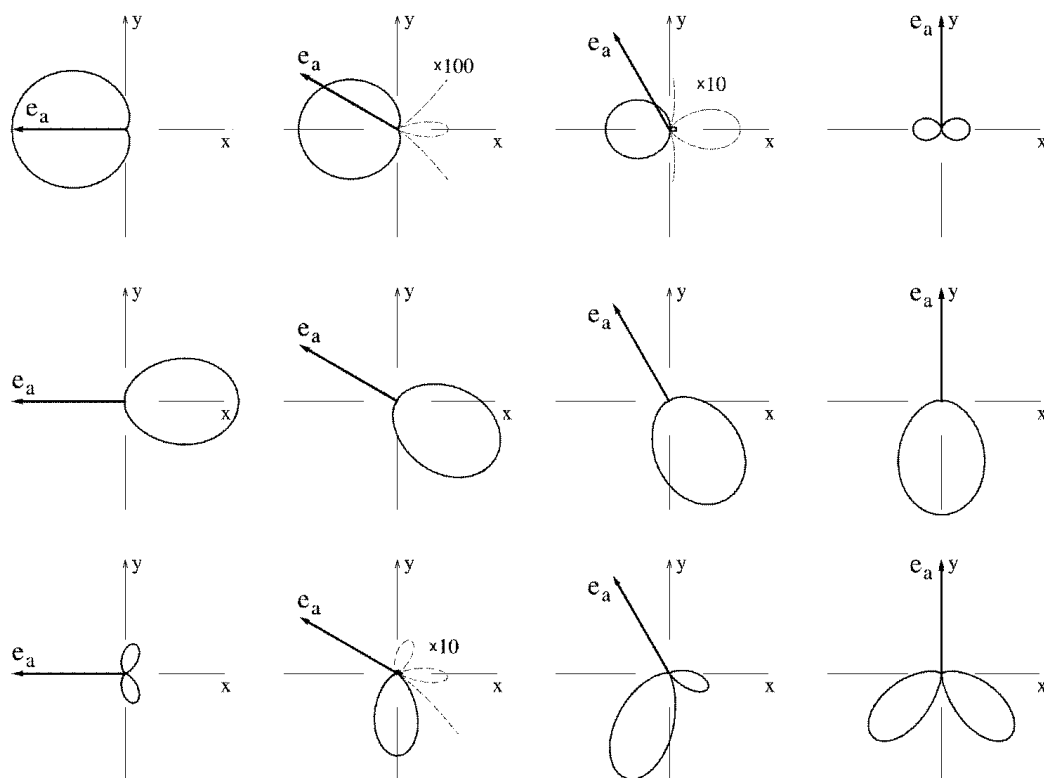


Abbildung 2.14: 5DCS der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht 20 eV über der Schwelle bei gleicher Energieaufteilung, aus [1]. Die Winkelverteilung (unterste Reihe) wurde nach Gleichung 2.9 berechnet. Der Polarisationsvektor verläuft parallel zur x-Achse. Die Richtung des festgehaltenen Elektrons  $e_a$  ist durch den Pfeil gekennzeichnet; der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor  $\vartheta_1$  ist für jede Spalte gleich. Von links nach rechts nimmt  $\vartheta_1$  folgende Werte an:  $\vartheta_1=180^\circ$ ,  $150^\circ$ ,  $120^\circ$  und  $90^\circ$ .

Die oberste Reihe zeigt den geometrischen Faktor  $(\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2)$ ; die mittlere Reihe beinhaltet das Quadrat der geraden Amplitude und die unterste Reihe enthält das Produkt aus dem geometrischen Faktor und dem Quadrat der geraden Amplitude. In bestimmten Winkelbereichen ist die Kurve vergrößert dargestellt.

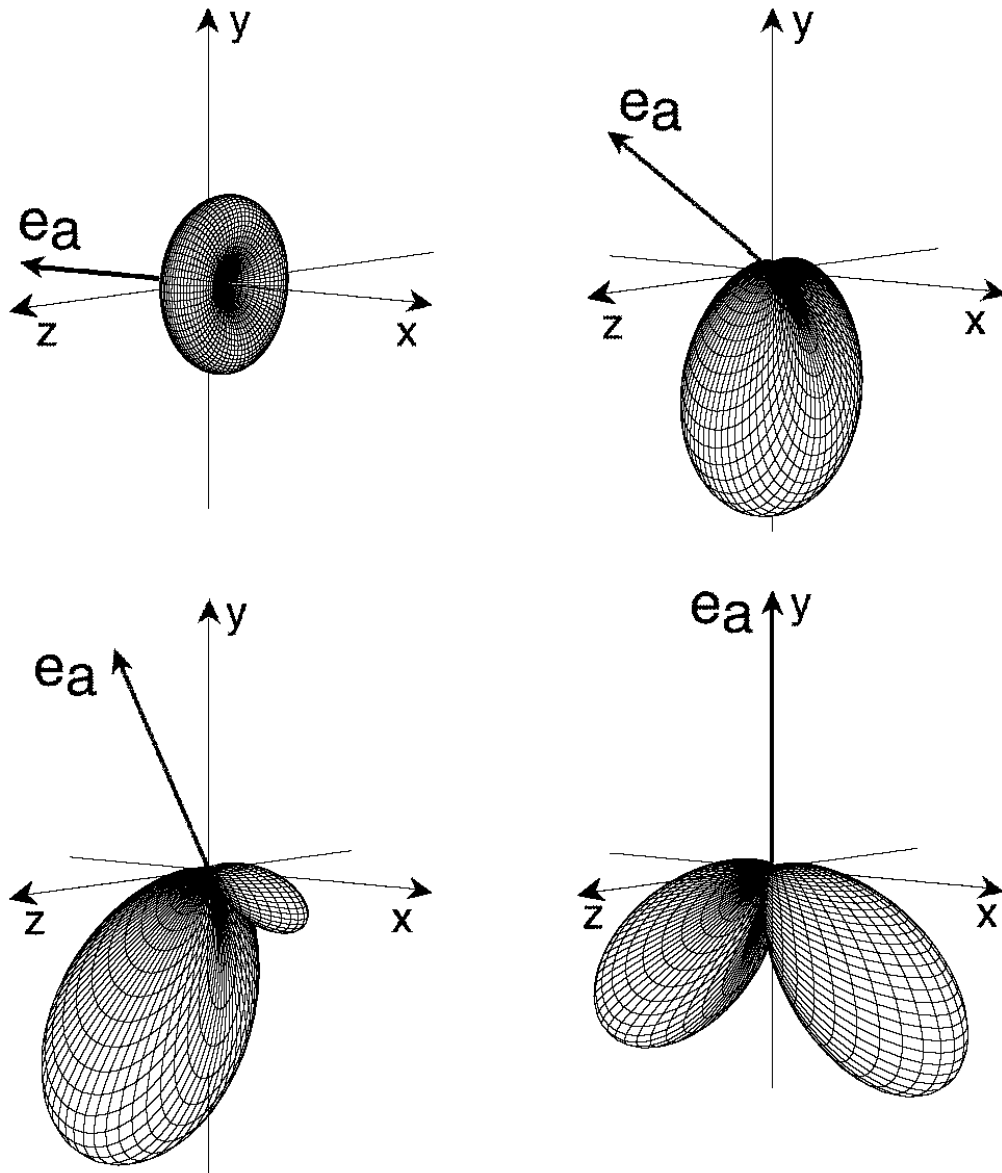


Abbildung 2.15: Räumliche Sicht der vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht 20 eV über der Schwelle für gleiche Energieaufteilung, aus [1]. Der Polarisationsvektor liegt entlang der x-Achse; z ist die Ausbreitungsrichtung des Lichtes. Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor beträgt  $\vartheta_1 = 180^\circ, 150^\circ, 120^\circ$  und  $90^\circ$ . Diese Abbildung benutzt die Parametrisierung von Huetz *et al.*: Für den Korrelationsfaktor wurde eine Gauß'sche Glockenkurve mit einer FWHM =  $91^\circ$  zugrundegelegt.

Zwischenwinkel wurde aus der Wannier-Näherung abgeleitet; das Maximum bei  $180^\circ$  stammt von der gegenseitigen Abstoßung der Elektronen [9].

Die Halbwertsbreite<sup>16</sup> (FWHM) variiert mit der Photon-Energie: Je größer die Photon-Energie, desto größer ist auch die Halbwertsbreite. Dies liegt daran, daß die gegenseitige Abstoßung der Elektronen bei kleinen Photon-Energien sich stärker auswirkt als bei großen Photon-Energien. Abbildung 2.13 zeigt experimentelle Resultate der Korrelationsweite in Abhängigkeit von der Energie über der Schwelle.

Im folgenden soll nun verdeutlicht werden, wie man bei gleicher Energieaufteilung und einer gegebenen Geometrie auf die Winkelverteilung schließen kann. Abbildung 2.14 stellt die Winkelverteilung des Quadrats der geraden Amplitude, die geometrischen Faktoren und die Winkelverteilung vom Produkt aus beidem dar. Das Quadrat der geraden Amplitude für  $E_1 = E_2 = 10$  eV wird durch eine Gauß'sche Glockenkurve mit  $\text{FWHM} = 91^\circ$  wiedergegeben. Der Polarisationsvektor liegt parallel zur x-Achse,  $e_a$  kennzeichnet das festgehaltene Elektron. Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor beträgt von links nach rechts  $\vartheta_1 = 180^\circ, 150^\circ, 120^\circ$  und  $90^\circ$ .

In der ersten Zeile ist der geometrische Faktor abgebildet:  $(\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2)$ . In der mittleren Zeile ist das Quadrat der geraden Amplitude - eine Gauß'sche Glockenkurve mit einer  $\text{FWHM} = 91^\circ$  - dargestellt. Das Produkt beider gibt die Winkelverteilung, wie sie in der letzten Zeile dargestellt ist, wieder. Die Abbildung verdeutlicht, wie man aus dem Quadrat der geraden Amplitude und dem geometrischen Faktor die Winkelverteilungen erhält.

Diese Abbildungen machen zudem deutlich, daß die komplette Information der Auswahlregeln in den geometrischen Faktoren zu finden ist. Alle relevanten Auswahlregeln sind in Abbildung 2.14 zu sehen. In allen vier Winkelverteilungen findet man die Auswahlregel C, die besagt, daß der Wirkungsquerschnitt Null ist, wenn  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$ . Die beiden Winkelverteilungen in der Mitte beinhalten zusätzlich noch die Auswahlregel F, die besagt, daß der Wirkungsquerschnitt bei gleicher Energieaufteilung Null ist, wenn  $\vartheta_2 = 180^\circ - \vartheta_1$  ist. Die Winkelverteilung ganz rechts zeigt Auswahlregel A. Sie ist für gleiche Energieaufteilung nicht von Auswahlregel C zu unterscheiden.

Abbildung 2.15 verdeutlicht die oben anhand von zwei Dimensionen erläuterte Konstruktion der Winkelverteilung unter Hinzunahme der dritten Dimension. Ein Schnitt in der  $xy$ -Ebene ist mit den gezeigten Winkelverteilungen in Abbildung 2.14 identisch. Gut sichtbar ist in Abbildung 2.15 links unten der Konus, verursacht durch die Auswahlregel F.

### **Einfluß der Amplituden $a_g$ und $a_u$ bei ungleicher Energieaufteilung $E_1 \neq E_2$**

Bei allen ungleichen Energieaufteilungen muß für die Winkelverteilung noch die ungerade Amplitude berücksichtigt werden. Anhand von 3C-Rechnungen<sup>17</sup> soll der Einfluß

<sup>16</sup>Diese Halbwertsbreite wird auch Korrelationsweite genannt.

<sup>17</sup>Information zur 3C-Rechnung enthält Kapitel 2.6.1.

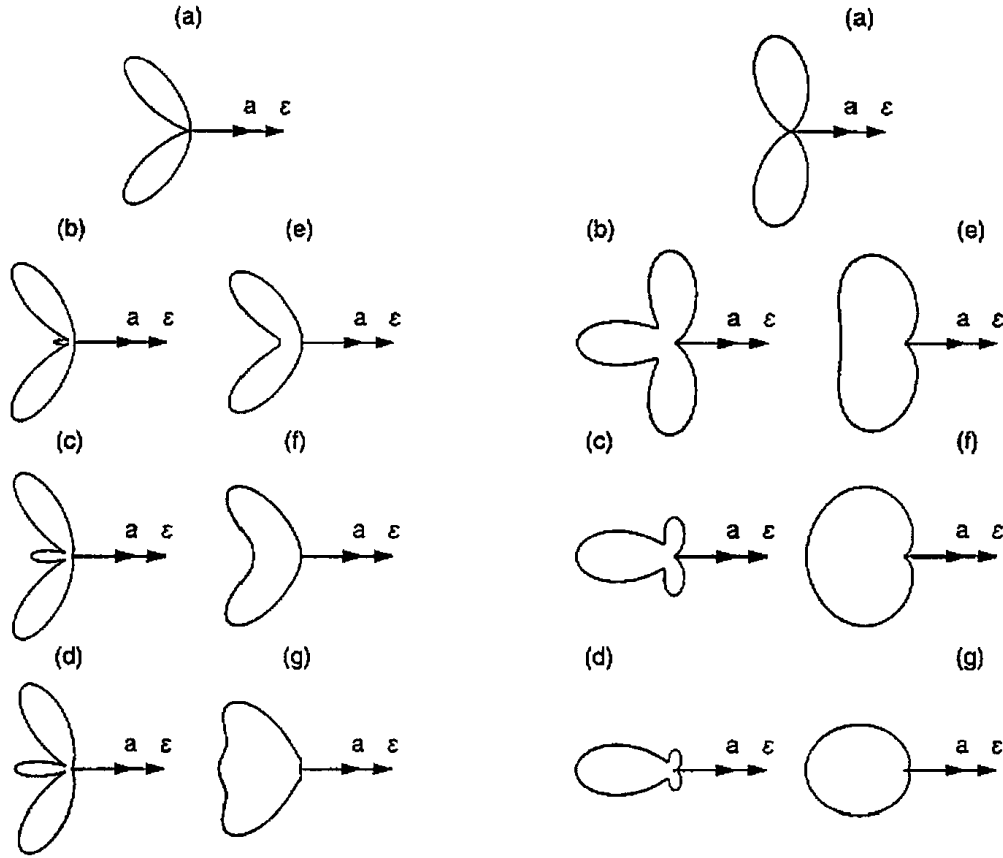


Abbildung 2.16: 3C-Rechnung der Winkelverteilung der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht für verschiedene Energieaufteilungen, aus [74]. Der Polarisationsvektor ist horizontal ausgerichtet. Das festgehaltene Elektron ist parallel zum Polarisationsvektor.

Links: 1 eV über der Schwelle. Die Energie des festgehaltenen Elektrons  $E_1$  beträgt: (a)  $E_1 = 0,5$  eV, (b)  $E_1 = 0,3$  eV, (c)  $E_1 = 0,2$  eV, (d)  $E_1 = 0,1$  eV, (e)  $E_1 = 0,7$  eV, (f)  $E_1 = 0,8$  eV, (g)  $E_1 = 0,9$  eV;

Rechts: 50 eV über der Schwelle. Die Energie des festgehaltenen Elektrons  $E_1$  ist: (a)  $E_1 = 25$  eV, (b)  $E_1 = 15$  eV, (c)  $E_1 = 10$  eV, (d)  $E_1 = 5$  eV, (e)  $E_1 = 35$  eV, (f)  $E_1 = 40$  eV, (g)  $E_1 = 45$  eV.

der ungeraden Amplitude bei unterschiedlichen Energieaufteilungen und verschiedenen Photon-Energien qualitativ deutlich gemacht werden. Die Abbildungen 2.16 und 2.17 zeigen Rechnungen bzgl. der Winkelverteilungen der Elektronen, wobei der Impuls des festgehaltenen Elektrons entlang der Polarisationsachse verläuft. Abbildung 2.16 (links) zeigt Winkelverteilungen für  $E_{exc} = 1$  eV. Variiert wird das Verhältnis von  $E_1$  zu  $E_2$ .  $E_1/E_2$  nimmt Werte zwischen  $1/9$  und  $9$  an. Im folgenden ist die Energie des festgehaltenen Elektrons mit  $E_1$  gekennzeichnet, die des komplementären mit  $E_2$ .

Vergleicht man die Winkelverteilung für ungleiche mit der für gleiche Energieaufteilung, so ist folgendes festzustellen: Die Winkelverteilung des schnellen Elektrons mit  $E_2 = 0,9$  eV unterscheidet sich zu der mit gleicher Energieaufteilung durch eine weitere Struktur, die in der englischen Literatur mit „lobe“ bezeichnet wird. Dieser Begriff wird im Folgenden herangezogen, wenn zum Ausdruck gebracht werden soll, daß es sich bei

der Winkelverteilung um eine runde, ellipsenförmige Struktur ähnlich einer Keule handelt. Je ungleicher die Energieaufteilung, desto größer ist dieser dritte Lobe gegenüber den anderen beiden.

Diese Winkelverteilungen für  $E_{exc} = 1$  eV über der Schwelle werden nun mit den Winkelverteilungen für  $E_{exc} = 50$  eV über der Schwelle (Abbildung 2.16 (rechts)) verglichen. Die Winkelverteilung für  $E_1 = E_2 = 25$  eV zeigt - wie schon bekannt - eine Zwei-Lobe-Struktur. Diese Winkelverteilung unterscheidet sich von der bei  $E_{exc} = 1$  eV in der Breite und der Lage der Lobes in bezug zum festgehaltenen Elektron. Dies ist folgerichtig, da die Korrelationsbreite bei 50 eV größer als bei 1 eV ist.

Im Falle ungleicher Energieaufteilung für  $E_{exc} = 50$  eV und einer Energie von  $E_2 = 45$  eV bildet sich wie schon bei  $E_{exc} = 1$  eV und ungleicher Energieaufteilung ein dritter Lobe aus. Dieser Lobe parallel zum Polarisationsvektor ist nun wesentlich größer gegenüber den anderen beiden Lobes, die nahezu senkrecht auf der Polarisationsachse stehen.

Um weiter auf diese Unterschiede eingehen zu können, wird der Einfluß der geraden und der ungeraden Amplitude auf die Winkelverteilung herausgearbeitet. Durch den Einfluß des geometrischen Faktors bei der geraden und der ungeraden Amplitude ist der 5DCS für parallele Emission allein durch die gerade Amplitude gegeben, während der 5DCS für antiparallele Emission allein durch die ungerade Amplitude definiert ist. Dies kann man anhand folgender Fallbeispiele erkennen.

Für parallele Emission läßt sich Gleichung 2.8 umschreiben zu

$$5DCS_{0^\circ}(E_1, E_2, \vartheta_1 = 0^\circ, \vartheta_{12} = 0^\circ) = 4 |a_g(E_1, E_2, \vartheta_{12} = 0^\circ)|^2. \quad (2.10)$$

Für antiparallele Emission ist der 5DCS definiert durch:

$$5DCS_{180^\circ}(E_1, E_2, \vartheta_1 = 0^\circ, \vartheta_{12} = 180^\circ) = 4 |a_u(E_1, E_2, \vartheta_{12} = 180^\circ)|^2. \quad (2.11)$$

Nach Gleichung 2.11 wird die Bildung des dritten Lobes parallel zum Polarisationsvektor durch die ungerade Amplitude verursacht. Bei einem Vergleich der verschiedenen Winkelverteilungen für  $E_{exc} = 1$  eV ist deutlich zu sehen, daß mit kleiner werdendem Verhältnis  $E_1/E_2$  (mit  $E_1 \leq E_2$ ) die ungerade Amplitude gegenüber der geraden Amplitude wächst. Vergleichend mit  $E_{exc} = 50$  eV zeigt sich, daß der Einfluß der ungeraden Amplitude bei 50 eV viel größer ist als bei 1 eV über der Schwelle. Dies ist deutlich sichtbar in Abbildung 2.17, in der die Variation der Winkelverteilung in Abhängigkeit von der Energie über der Schwelle für eine festes Verhältnis von  $E_1$  zu  $E_2$  dargestellt ist. Der Lobe parallel zum Polarisationsvektor wächst mit höheren Photon-Energien gegenüber den beiden anderen Lobes, die sich fast senkrecht zum Polarisationsvektor befinden. Dies zeigt den wachsenden Einfluß der ungeraden Amplitude mit größer werdender Photon-Energie.

Während schon 1993 das Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  für gleiche Energie-



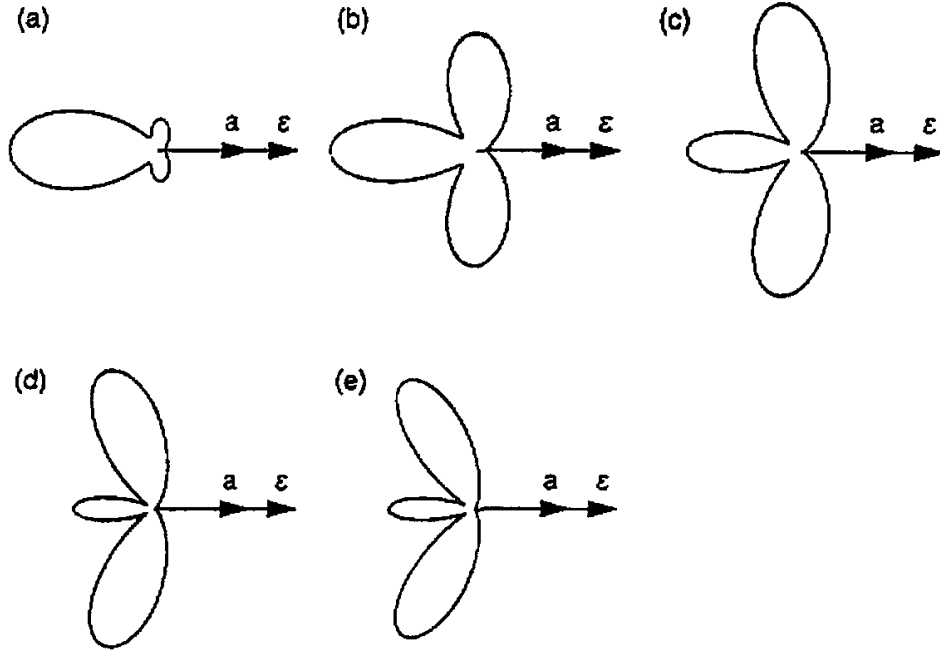


Abbildung 2.17: 3C-Rechnung der Winkelverteilung der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht für eine feste Energieaufteilung, aber verschiedenen Energien über der Schwelle, aus [74]. Der Polarisationsvektor ist horizontal ausgerichtet. Das festgehaltene Elektron ist parallel zum Polarisationsvektor. Das Verhältnis von  $E_1$  zu  $E_2$  beträgt  $1/9$ , wobei  $E_1$  kleiner als  $E_2$  ist. Die Energie über der Schwelle  $E_{exc}$  ist: (a)  $E_{exc} = 50$  eV,  $E_{exc} = 10$  eV,  $E_{exc} = 5$  eV,  $E_{exc} = 2$  eV und  $E_{exc} = 1$  eV.

aufteilung extrahiert wurde [49] und in einem Fall für die ungerade Amplitude [67], ist es erst kürzlich Bolognesi *et al.* [75] gelungen,  $|a_g|^2$ ,  $|a_u|^2$  und den Cosinus der Relativphase zwischen  $|a_g|$  und  $|a_u|$  für den Fall ungleicher Energieaufteilung ( $5 \text{ eV} \leftrightarrow 35 \text{ eV}$ )  $E_{exc} = 40 \text{ eV}$  über der Schwelle zu extrahieren. Sie haben nicht nur gezeigt, daß die Quadrate der Amplituden  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$  die Form einer Gauß'schen Glockenkurve haben, sondern auch, daß  $|a_u|^2$  eine kleinere Korrelationsweite gegenüber  $|a_g|^2$  besitzt.

Die Gauß'sche Verteilung der Zwischenwinkel ist aus der Wannier-Näherung hergeleitet, die jedoch auf geringe  $E_{exc}$  beschränkt ist. Wie sich der Verlauf der geraden und ungeraden Amplitude mit wachsender Photon-Energie ändert, wird in Kapitel 5.7 und 6.6 untersucht.

## 2.5.2 Parametrisierung für zirkular polarisiertes Licht

Die Messung vom 5DCS mit linear polarisiertem Licht enthält nur den Realteil von  $\{a_g a_u^*\}$  und entspricht dem Cosinus der Phase  $\Phi$  multipliziert mit  $|a_g| |a_u|$ .

Für die volle Information der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht wird jedoch nicht nur der Cosinus der Phase, sondern auch der Sinus der Phase benötigt. Nach Huetz *et al.* [9] und Malegat *et al.* [10] ist der 5DCS für links und rechts zirkular polarisiertem Licht bestimmt durch:

$$5\text{DCS}_{\sigma^\pm} = \frac{d^5\sigma}{dE_1 d\cos\vartheta_1 d\cos\vartheta_2 d\varphi_1 d\varphi_2} = \frac{1}{2} \{ |a_g(\sin\vartheta_1 + \sin\vartheta_2 e^{\pm i\varphi_{12}}) + a_u(\sin\vartheta_1 - \sin\vartheta_2 e^{\pm i\varphi_{12}})|^2 \} \quad (2.12)$$

Und das ist gleich mit:

$$\begin{aligned} 5\text{DCS}_{\sigma^\pm} &= \frac{1}{2} \{ |a_g|^2 (\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 + 2\sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \cos\varphi_{12}) \\ &\quad + |a_u|^2 (\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 - 2\sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \cos\varphi_{12}) \\ &\quad - 2\text{Re}\{(\sin^2\vartheta_1 - \sin^2\vartheta_2 \pm 2i \cdot \sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \sin\varphi_{12}) a_g a_u^*\} \} \\ &= \frac{1}{2} \{ |a_g|^2 (\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 + 2\sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \cos\varphi_{12}) \\ &\quad + |a_u|^2 (\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 - 2\sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \cos\varphi_{12}) \\ &\quad - 2(\sin^2\vartheta_1 - \sin^2\vartheta_2) \text{Re}\{a_g a_u^*\} \\ &\quad \mp 4 \cdot \sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \sin\varphi_{12} \text{Im}\{a_g a_u^*\} \} \end{aligned} \quad (2.13)$$

Diesmal sind  $\vartheta_1$  und  $\vartheta_2$  die polaren Emissionswinkel der beiden Elektronen in bezug auf die Strahlachse, also die Ausbreitungsrichtung des Lichts.  $\varphi_{12}$  ist der azimuthale Zwischenwinkel  $\varphi_{12} = \varphi_1 - \varphi_2$  zwischen beiden Elektronen.  $a_g$  und  $a_u$  sind die oben spezifizierten Amplituden.

Diese Gleichung unterscheidet sich für den 5DCS für links und rechts zirkular polarisiertes Licht nur in einem Vorzeichen. Indem man beide 5DCS voneinander subtrahiert, hebt sich bis auf den Imaginärteil  $\{a_g a_u^*\}$  alles auf. Die Differenz zwischen  $5\text{DCS}_{\sigma^+}$  und  $5\text{DCS}_{\sigma^-}$  ist identisch mit dem unnormierten Zirkularen Dichroismus (CD):

$$\text{CD} = -4 \cdot \sin(\varphi_{12}) \text{Im}\{a_g a_u^*\} = -4 \cdot \sin(\varphi_{12}) |a_g| |a_u| \sin(\Phi). \quad (2.14)$$

Dieses Ergebnis besagt, daß der Zirkulare Dichroismus die Information der Phasenbeziehung beider Übergangsamplituden enthält und somit einen Interferenzterm darstellt. Der Messung des Zirkularen Dichroismus kommt deshalb eine besondere Bedeutung zu, da seine Untersuchung auch gleichzeitig die Untersuchung des Interferenzterms beinhaltet.

### Gleiche Energieaufteilung $E_1 = E_2$

Für den Fall gleicher Energieaufteilung verschwindet die ungerade Amplitude. Gleichung 2.13 reduziert sich damit zu:

$$5\text{DCS}_{\sigma^\pm} \Big|_{E_1=E_2} = \frac{1}{2} \{ |a_g|^2 (\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 + 2\sin\vartheta_1 \cdot \sin\vartheta_2 \cdot \cos\varphi_{12}) \}. \quad (2.15)$$

Für den Fall, daß beide Elektronen senkrecht zur Strahlrichtung emittiert werden, läßt sich Gleichung 2.15 wie folgt ausdrücken:

$$5\text{DCS}_{\sigma\pm} \Big|_{E_1=E_2} = |a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12}). \quad (2.16)$$

### 2.5.3 Beziehung der vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte von linear zu denen von zirkular polarisiertem Licht

Im Kapitel 2.4 wurde eine Möglichkeit gezeigt, wie man Daten für zirkular polarisiertes Licht auf systematische Fehler überprüfen kann (Gleichung 2.6). In diesem Kapitel wird eine Methode von J. Berakdar [76] vorgestellt, wie man einen Photodoppelionisationsdatensatz für linear und zirkular polarisiertes Licht auf systematische Fehler überprüfen kann. Die Herleitung der Gültigkeit dieses Konsistenz-Checks wird auch unter dem Blickwinkel der Parametrisierung von Huetz *et al.* und Malegat *et al.* betrachtet.

Für die Herleitung wird der physikalische Umstand benutzt, daß der zirkular polarisierte Zustand der Photonen aus zwei linear polarisierten Zuständen, deren Phasenbeziehung fest zueinander ist, konstruiert werden kann.

Indem man ein Koordinatensystem benutzt, in dem die z-Achse entlang des Wellenvektors des zirkular polarisierten Photons weist, kann die Übergangsamplitude  $|T_{\sigma\pm}| = \sqrt{5\text{DCS}_{\sigma\pm}}$  mit rechts bzw. links zirkular polarisiertem Licht wie folgt geschrieben werden:

$$|T_{\sigma\pm}| = \frac{1}{\sqrt{2}} (|T_x| \pm i |T_y|) \quad (2.17)$$

Hierbei ist  $|T_{\sigma\pm}|^2$  der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht, wobei beide Elektronen senkrecht zur Lichtausbreitung festgehalten sind.  $|T_x|^2$  bzw.  $|T_y|^2$  sind die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte mit linear polarisiertem Licht, wobei das festgehaltene Elektron einmal entlang des Polarisationsvektors und das andere Mal senkrecht dazu verläuft. Das zweite, komplementäre Elektron befindet sich in der Ebene, die durch das erste Elektron und den Polarisationsvektor aufgespannt ist. Im folgenden werden  $|T_{\sigma\pm}|$  und  $|T_x|$  bzw.  $|T_y|$  in der Parametrisierung durch Huetz *et al.* ausgedrückt:

$|T_{\sigma\pm}|$  ist durch Gleichung 2.12 gegeben:  $|T_{\sigma\pm}|$  läßt sich, da  $\sin \vartheta_1 = \sin \vartheta_2 = 1$  ist, folgendermaßen bestimmen:  $|T_{\sigma\pm}| = 1/\sqrt{2} |a_g(1 + e^{\pm i\varphi_{12}}) + a_u(-1 + e^{\pm i\varphi_{12}})|$ .

Möchte man  $|T_x|$  bzw.  $|T_y|$  in der Parametrisierung ausdrücken, so muß Gleichung 2.8 genommen werden: Dabei ist der Winkel  $\vartheta_1 = 0^\circ$  für  $|T_x|$  und  $\vartheta_1 = 90^\circ$  für  $|T_y|$ .  $\vartheta_2$  wird durch den Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  ausgedrückt. Für  $|T_x|$  heißt das:  $\vartheta_{12} = \vartheta_2$ ;

für  $|T_y|$  gilt:  $\cos \vartheta_2 = \cos \vartheta_{12} - 90^\circ = \sin \vartheta_{12}$ , da hier die Polarisationsachse um  $90^\circ$  gedreht ist.

Durch Einsetzen ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{\sqrt{2}} |a_g(1 + e^{\pm i\varphi_{12}}) + a_u(1 - e^{\pm i\varphi_{12}})| &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|a_g(1 + \cos \varphi_{12}) + a_u(1 - \cos \varphi_{12})| \\
 &\quad \pm i |a_g(\sin \varphi_{12}) - a_u(\sin \varphi_{12})|) \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|a_g(1 + \cos \varphi_{12} \pm i \sin \varphi_{12}) \\
 &\quad + a_u(1 - (\cos \varphi_{12} \pm i \sin \varphi_{12}))|) \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2}} \{ |a_g(1 + e^{\pm i\varphi_{12}}) \\
 &\quad + a_u(1 - e^{\pm i\varphi_{12}})| \} \quad (2.18)
 \end{aligned}$$

Quadriert man Gleichung 2.17 und addiert den 5DCS für rechts zirkular polarisiertes Licht auf den von links zirkular polarisiertem Licht, so erhält man:

$$\begin{aligned}
 |T_{\sigma^+}|^2 + |T_{\sigma^-}|^2 &= |T_x|^2 + |T_y|^2 \quad (2.19) \\
 \iff 5DCS_{\sigma^-} + 5DCS_{\sigma^+} &= 5DCS_{\varepsilon_x} + 5DCS_{\varepsilon_y} \\
 &= 2\{ |a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12}) \\
 &\quad + |a_u|^2 (1 - \cos \varphi_{12}) \} = \Sigma \quad (2.20)
 \end{aligned}$$

Gleichung 2.20 ist in Kapitel E ausführlich hergeleitet.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Summe  $\Sigma$  einer inkohärenten Addition der quadrierten Übergangsamplituden der Photodoppelionisation mit links und rechts zirkular polarisiertem Licht, bzw. linear polarisiertem Licht entlang der zwei senkrechten Richtungen  $x$  und  $y$  entspricht. Durch die Summation geht die Phasenbeziehung zwischen den Übergangsamplituden verloren. Die Summe stellt demnach den differentiellen Wirkungsquerschnitt unpolarisierter Strahlung dar, den man, unabhängig von der gewählten Basis, aus den Wirkungsquerschnitten jeweils orthogonaler Polarisationsrichtungen bilden kann. Des weiteren bietet Gleichung 2.20 eine Möglichkeit, die 5DCS von linear und zirkular polarisiertem Licht auf systematische Fehler hin zu untersuchen.

In der hier gegebenen Ableitung wurde eine bestimmte Geometrie vorausgesetzt. Gleichung 2.19 läßt sich jedoch auch allgemein beweisen. Anschaulich besagt sie, daß unabhängig vom Positionswinkel der Elektronenanalysatoren die Koinzidenzrate von linear polarisierten Licht entlang der  $x$ - und der  $y$ -Richtung gleich der Summe der Zählrate von rechts und links zirkular polarisiertem Licht ist, das sich entlang der  $z$ -Richtung ausbreitet.

## 2.6 Berechnungsverfahren

Generell ist die Übergangsamplitude gegeben durch  $T = \langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle = \langle \Psi_f | \vec{e} \cdot \vec{D} | \Psi_i \rangle$ , wobei  $\Psi_i$  und  $\Psi_f$  die Wellenfunktion im Anfangs- und im Endzustand ist;  $\vec{e}$  ist der Polarisationsvektor, und  $\vec{D} = (\nabla_{r_1} + \nabla_{r_2})$  ist der Dipol-Operator in Geschwindigkeitsform. Man kann das Matricelement durch eine Eichtransformation des Dipoloperators in der „Längenform“ und der „Beschleunigungsform“ angeben. Alle drei Formen sind vom Prinzip her äquivalent. Sie führen jedoch nur zu gleichen Ergebnissen, wenn die Wellenfunktionen für Anfangs- und Endzustand exakt sind. Bei einer realistischen Rechnung ist daher die Überprüfung der Invarianz der Ergebnisse gegenüber der Eichung ein wichtiger Realitäts-Check.

### 2.6.1 3-Coulomb-Wave

3C steht für 3-Coulomb-Wave; in dieser Theorie wird der Endzustand durch das Produkt zweier ebener Wellen und drei Coulomb-Phasen beschrieben. Alle drei Coulomb-Wechselwirkungen zwischen dem Ion und den Elektronen werden durch sogenannte Coulomb-Korrekturterme genähert. Solche Terme sind bei geringen Energien und/oder kleinen Teilchenabständen relevant; somit ist die 3C-Theorie für große Teilchenabstände oder für hohe Energien zuverlässig, da sie sich auf die Coulomb-Abstoßung in den asymptotischen Regionen konzentriert [77].

Die fundamentale Stärke der 3C-Beschreibung des Zwei-Elektronen-Zustandes besteht unter anderem darin, daß sie die korrekten Randbedingungen für unendliche Separation der Elektronen und des Rückstoßions erfüllt. Des weiteren erhält sie aufgrund der eingebauten Wechselwirkung im Endkanal Zwei-Teilchen-Mehrfachstreuung höherer Ordnungen.

Trotz einiger Schwachstellen kann sie erfolgreich für die qualitative und bedingt auch für die quantitative Beschreibung der Photodoppelionisation von Helium angewendet werden [78]; d.h. die Winkelverteilungen werden oft qualitativ gut beschrieben, der absolute Wirkungsquerschnitt kann jedoch je nach Energie um mehrere Größenordnungen falsch sein.

### 2.6.2 Convergent-close-coupling

Die convergent-close-coupling-Methode (kurz: CCC) ist eine Weiterentwicklung aus dem close-coupling-Formalismus. Bei der CCC wird nur eins von beiden Elektronen als Coulomb-Welle behandelt. Das zweite Elektron befindet sich in einem sog. „pseudo-state“. Dies stellt eine gewisse Asymmetrie in der Behandlung beider Elektronen dar.

Der Zwei-Elektronen-Endzustand wird in einem Set von „N Pseudo-states“ entwickelt (ausgedrückt in einer Basis von  $L^2$  integrierbaren Laguerre-Funktionen), die man durch Diagonalisieren des Ein-Elektron-Hamiltonian erhält; d.h. daß nur einem Elektron erlaubt

wird, sich unendlich weit vom Kern zu entfernen. Der Kontinuumszustand des anderen Elektrons wird durch die positiv diskreten Pseudo-Zustände beschrieben. Somit „sieht“ das erste Elektron eine elektrische Ladung des Kerns von  $Z = 1$  und das zweite Elektron eine elektrische Ladung von  $Z = 2$ . Die Berechnung geht weiter, indem das Übergangsmatrixelement in der pseudo-state-Basis „expandiert“ wird und die Lippmann-Schwinger-Gleichungen gelöst werden. Somit wird die Basis erweitert, bis Konvergenz erreicht ist [1].

Die CCC-Methode ist sehr rechenintensiv; ihre Ergebnisse der absoluten Wirkungsquerschnitte werden von experimentellen Daten, d.h. Messungen gestützt und stimmen in der Regel bei allen drei Formen (Längen-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform) gut überein. Das zeichnet sie als zuverlässige Rechenmethode aus.

Weitere Informationen zur CCC-Rechenmethode enthält die Literatur [79, 80, 81, 82].

# Kapitel 3

## Experimenteller Aufbau

Um die Photodoppelionisation und speziell die Elektronenkorrelation zu untersuchen, muß der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt gemessen werden. Dies beinhaltet die Bestimmung von fünf Impulskomponenten. Es empfiehlt sich jedoch, mindestens sechs zu messen. Bei einer Messung von sechs Impulskomponenten erhält man ein einfach überbestimmtes Gleichungssystem, und die gemessenen Daten lassen sich auf Energie-Erhaltung überprüfen. Dies ermöglicht eine sehr effektive Unterdrückung jeglichen Untergrundes.

### Erforderliche Eigenschaften der Meßapparatur

Da der absolute Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation bei 100 eV über der Schwelle unterhalb von 3 kbarn liegt und der für 450 eV sogar unterhalb von 0,1 kbarn [83, 15], ist es vorteilhaft, die bei einer Ionisation entstehenden Elektronen und Ionen im vollen Raumwinkel zu messen, um für eine gegebene Meßzeit so viele Koinzidenzen wie möglich aufzunehmen.

Des weiteren soll die Dynamik nicht nur für eine einzige Energieaufteilung oder eine einzige kinematische Bedingung, sondern möglichst für alle untersucht werden. Es soll also möglichst der gesamte Phasenraum des Endzustandes der Photodoppelionisation gemessen werden.

Schließlich ist es von Vorteil, wenn die aufgenommenen Daten Event für Event gespeichert werden, so daß man auch nach Abschluß der Datenaufnahme verschiedene Parameter definieren und in die Datenanalyse einbeziehen kann. All diese Aspekte beinhaltet die COLTRIMS-Technik<sup>1</sup> [3, 4, 5, 6].

---

<sup>1</sup>in Kombination mit einer event-mode Datenaufnahme

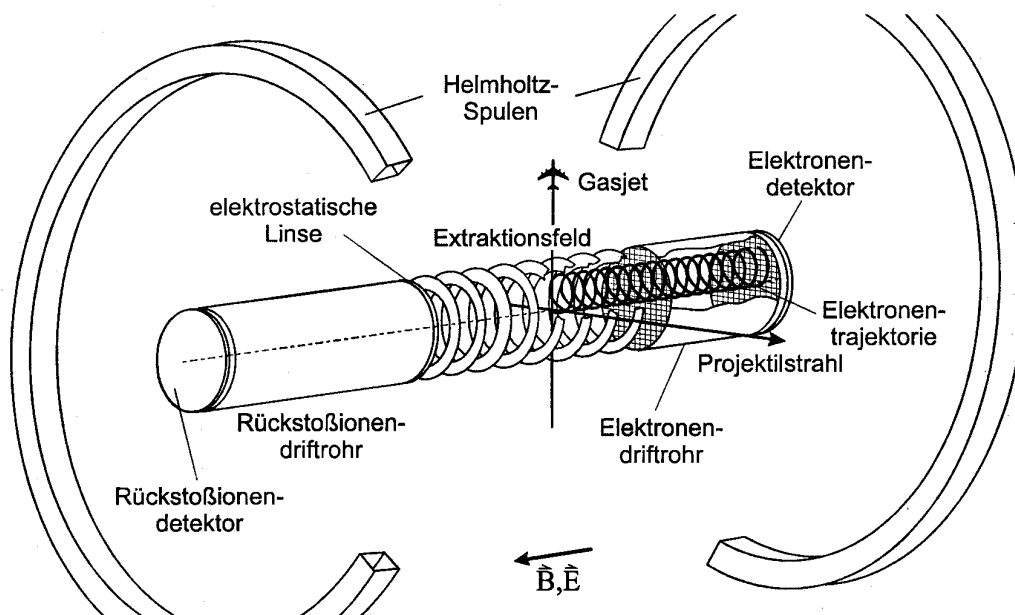


Abbildung 3.1: Darstellung des COLTRIMS-Meßprinzips, aus [38]; ein durch Potentialringe erzeugtes elektrisches Feld saugt die aus einer Reaktion entstandenen Elektronen und Ionen jeweils auf einen ortssensitiven Detektor ab. Da dem elektrischen noch ein magnetisches Feld (erzeugt durch ein Helmholtzspulenpaar) überlagert ist, beschreiben die Trajektorien der Elektronen Zyklotron-Bahnen. Der Überschalljet entsteht durch adiabatische Expansion.

### 3.1 Das COLTRIMS-Meßprinzip

COLTRIMS steht für „COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“ und deutet an, daß bei dieser Methode der Impuls des bei der Reaktion entstandenen Rückstoßions gemessen wird. Schwarzkopf *et al.* [49] haben für ihre erste  $(\gamma, 2e)$ -Messung die Energien und die Emissionswinkel der beiden Elektronen gemessen. Da der Experimentator wählen kann, welche der fünf erforderlichen Größen er mißt, kann er auch eins der beiden Elektronen und das doppelgeladene Heliumion nachweisen. Mit Hilfe der Impulserhaltung läßt sich dann der nicht gemessene Impuls des zweiten Elektrons bestimmen.

Im folgenden wird zunächst das COLTRIMS-Meßprinzip näher erläutert, um dann auf den Aufbau des Experiments eingehen zu können. Nach einer kurzen Beschreibung der Funktionsweise einer Synchrotronstrahlenquelle werden die einzelnen Komponenten der Vakuum-Kammer, nämlich das Jetsystem, das Spektrometer und die ortssensitiven Detektoren in ihrer Funktionsweise erläutert. Zuletzt wird auf die Signalverarbeitung eingegangen.

Bei diesem Meßprinzip (Abbildung 3.1) wird der Wechselwirkungszone, die sich in einem Vakuum von etwa  $10^{-7}$  mbar befindet<sup>2</sup>, ein schwaches elektrisches Feld (von wenigen Volt pro Zentimeter) überlagert. Die bei einer Reaktion entstandenen elektrisch gela-

<sup>2</sup>was unter anderem für eine ausreichend große mittlere freie Weglänge sorgt



denen Teilchen werden durch das elektrische Feld entsprechend ihrer Ladung abgesaugt. An beiden Enden des elektrischen Feldes befindet sich jeweils ein orts- und zeitauflösender Detektor. Ist die Stärke des elektrischen Feldes bekannt, so kann den einzelnen Teilchen aus der Flugzeit und dem Auftreffort auf dem Detektor ein dreidimensionaler Impuls zugeordnet werden.

### **Brown'sche Molekularbewegung des Gases**

Die Masse des doppelt geladenen Heliumions ist 7300 mal größer als die der Elektronen. Daher trägt das Ion zwar einen Impuls, aber fast keine Energie (nur wenige meV gegenüber mehreren eV der Elektronen). Da aber die Brown'sche Molekularbewegung eines Heliumatoms bei Zimmertemperatur in der Größenordnung von 39 meV liegt, ist es nicht möglich, den Summenimpuls der Elektronen aus der Impuls-Messung des Rückstoßions zu ermitteln.

### **Kühlung des Gastargets durch adiabatische Expansion**

Die störende Brown'sche Molekularbewegung wird durch Kühlung des Gases vermindert, wobei die Kühlung durch adiabatische Expansion des Heliumgases erreicht wird, bei der die gesamte Enthalpie der Gasteilchen in gerichtete Bewegung umgewandelt wird. Die Geschwindigkeit der Gasteilchen bei Austritt aus der Düse ist schneller als der Schall. Dieser Überschall-Gasjet wird mit dem Photonenstrahl gekreuzt. Das dabei entstehende Überlapp-Volumen bildet die Wechselwirkungszone, die sich innerhalb des elektrischen Feldes befindet.

### **Aufbau und Funktionsweise des Spektrometers**

Das Spektrometer (siehe Abbildung 3.15) besteht im wesentlichen aus parallel angeordneten Kupferplatten, die so beschaffen sind, daß bei einer Aneinanderreihung dieser Kupferplatten in der Mitte ein zylindrischer Hohlraum entsteht, in dem die Wechselwirkung stattfindet. Die Spektrometerplatten sind durch eine Kette von Widerständen miteinander verbunden, so daß durch Anlegen einer elektrischen Spannung zwischen den Enden des Spektrometers in dessen Innern ein homogenes Feld erzeugt wird. Störende Feldverzerrungen werden vermieden, indem der Abstand der Platten im Verhältnis zu deren Abmessungen klein gehalten ist.

Das Spektrometer-System wird in der Regel für jedes Experiment neu konzipiert, um die jeweiligen Anforderungen der einzelnen Experimente bezüglich Energie-, bzw. Impulsauflösung und Detektion aller Elektronen und Ionen im vollen Raumwinkel bis zu einer gewissen Energie optimal zu erfüllen. Die Geometrie des Spektrometers und das am Targetort vorhandene elektrische Feld bestimmen die maximale Energie der im vollen Raumwinkel gemessenen Elektronen und die Impulsauflösung der geladenen Teilchen.

Dem elektrischen Feld kann noch ein magnetisches Feld überlagert werden [84]; dies ist dann sinnvoll, wenn man für gleiche Impulsauflösung in Flugzeitrichtung die maximale Energie der im vollen Raumwinkel zu detektierenden Elektronen erhöhen möchte. Micro-Channel-Plate-Delay-Line-Detektoren ermöglichen eine Ortsauflösung, die genauer als 0,2 mm ist.

Im folgenden wird eine Übersicht über den verwendeten Aufbau gegeben.

## 3.2 Verwendeter Aufbau

Der von der Synchrotronstrahlenquelle erzeugte Photonenstrahl wird in einen Überschall-Heliumjet fokussiert. Elektronen mit einer Energie von maximal 60 eV werden durch ein elektrisches und magnetisches Feld im vollen Raumwinkel von  $4\pi$  auf einem großen ortssensitiven Channel-Plate-Delay-Line-Detektor [85] abgebildet. Das elektrische Feld projiziert die Rückstöße auf einen zweiten ortssensitiven Detektor. Aus Flugzeit und Auftreffort lassen sich Ladungszustand und Impuls der Teilchen ermitteln [84]. Der Impuls des schnellen, nicht detektierten Elektrons läßt sich aus dem gemessenen Impuls des langsamen Elektrons und des Rückstoßes mittels Impulserhaltung berechnen. Aus den einzelnen dreidimensionalen Impulsvektoren lassen sich die jeweilige Energie und der Polar- und Azimutalwinkel der Teilchen berechnen.

Abbildung 3.2 zeigt eine Skizze der COLTRIMS-Kammer, die aus einer zweistufigen Quellkammer mit zwei Skimmern, einer Reaktionskammer und einem Jet-Dump besteht. Der Überschalljet wird in der zweistufigen Quellkammer erzeugt und tritt in die Reaktionskammer ein, in der sich das Spektrometer und die beiden ortssensitiven Detektoren befinden. Die Target-Region befindet sich im Schnittpunkt der Spektrometerachse und der Verlängerung der Düse sowie der beiden Skimmer. Der Jet wird im Jet-Dump von einer Turbomolekularpumpe abgesaugt.

### Funktionen des Vakuums

Alle drei Teilkammern werden von Turbo-Molekularpumpen evakuiert. Damit werden unterschiedliche Ziele verfolgt: Das Spektrometer mit den Detektoren muß sich in einem Vakuum von etwa  $10^{-7}$  mbar befinden, damit eine ausreichend freie mittlere Weglänge für die Elektronen und Ionen gewährleistet ist. Des weiteren erfordern die Detektoren für ihren Betrieb einen Druck  $\leq 10^{-5}$  mbar. Für die Erzeugung des Jets muß die Quellkammer evakuiert werden. Da es bei der COLTRIMS-Methode wichtig ist, daß die Rückstoßionen von einem lokalisierten Punkt (Überlappvolumen) starten, muß der lokale Druck am Wechselwirkungsort wesentlich größer als der des Restgases sein. Die Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation außerhalb des Wechselwirkungsvolumens ist dann vernachlässigbar gering.

Um den Druck in der Reaktionskammer weiter abzusenken, wurde eine Kühlfalle verwendet.

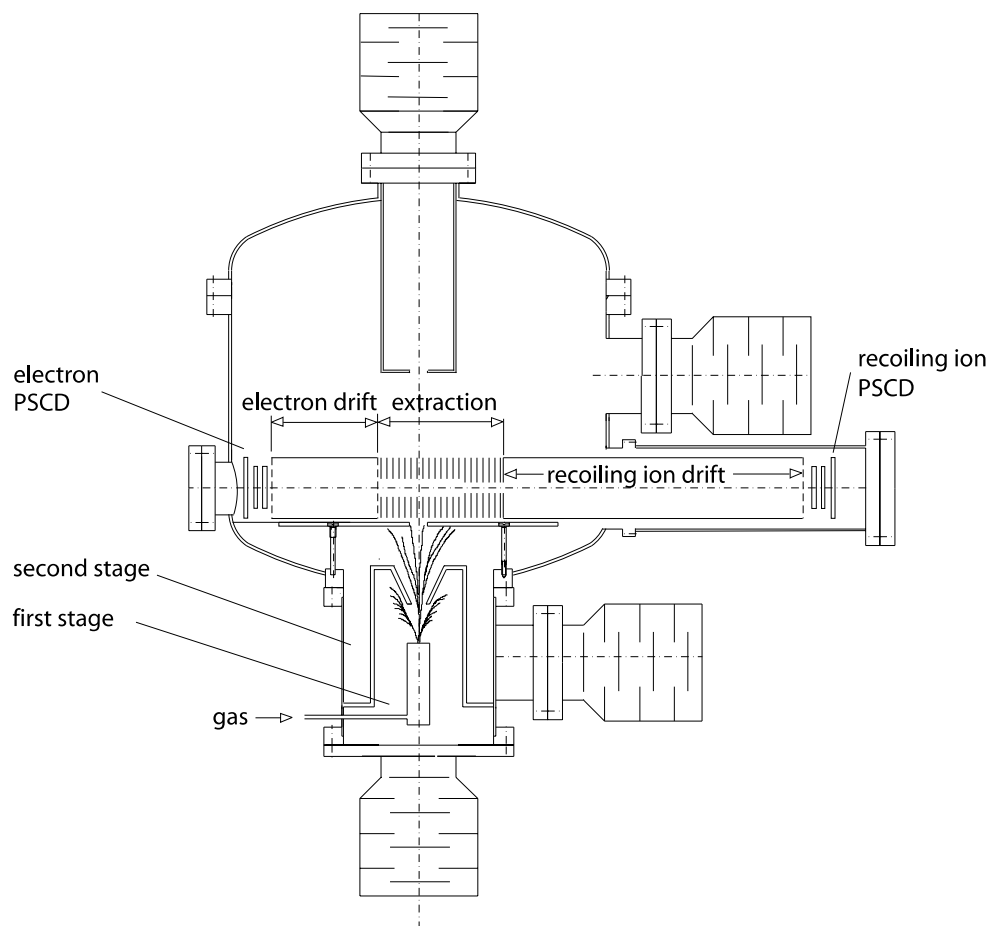


Abbildung 3.2: COLTRIMS-Kammer: Der Überschallgasjet wird in der zweistufigen Quellkammer erzeugt (unten), tritt in die Reaktionskammer ein, geht durch das Spektrometer und wird im Jet-Dump abgesaugt (oben). Die Reaktionszone liegt im Schnittpunkt zwischen der Spektrometerachse und dem Jet. Das Magnetfeld wird durch ein Helmholtzspulenpaar erzeugt; das elektrische Spektrometer besteht aus einem Extraktionsfeld (mit einer elektrostatischen Linse auf der Rückstoßionenseite) und einer Drift-Region jeweils für die Elektronen und die Rückstoßionen. An beiden Seiten des Spektrometers befindet sich ein ortssensitiver Micro-Channel-Plate-Delay-Line-Detektor (PSCD). Typische Drücke sind:  $\text{Druck}_{\text{Quell}} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$ ,  $\text{Druck}_{\text{Reaktionskammer}} = 1 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$  und  $\text{Druck}_{\text{Dump}} = 3,5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ . Die Pumpleistung in der ersten Jet-Stufe beträgt  $1500 \text{ l/s}$ , die in der zweiten Jet-Stufe, an der Target-Kammer und am Jet-Dump jeweils  $200 \text{ l/s}$ .

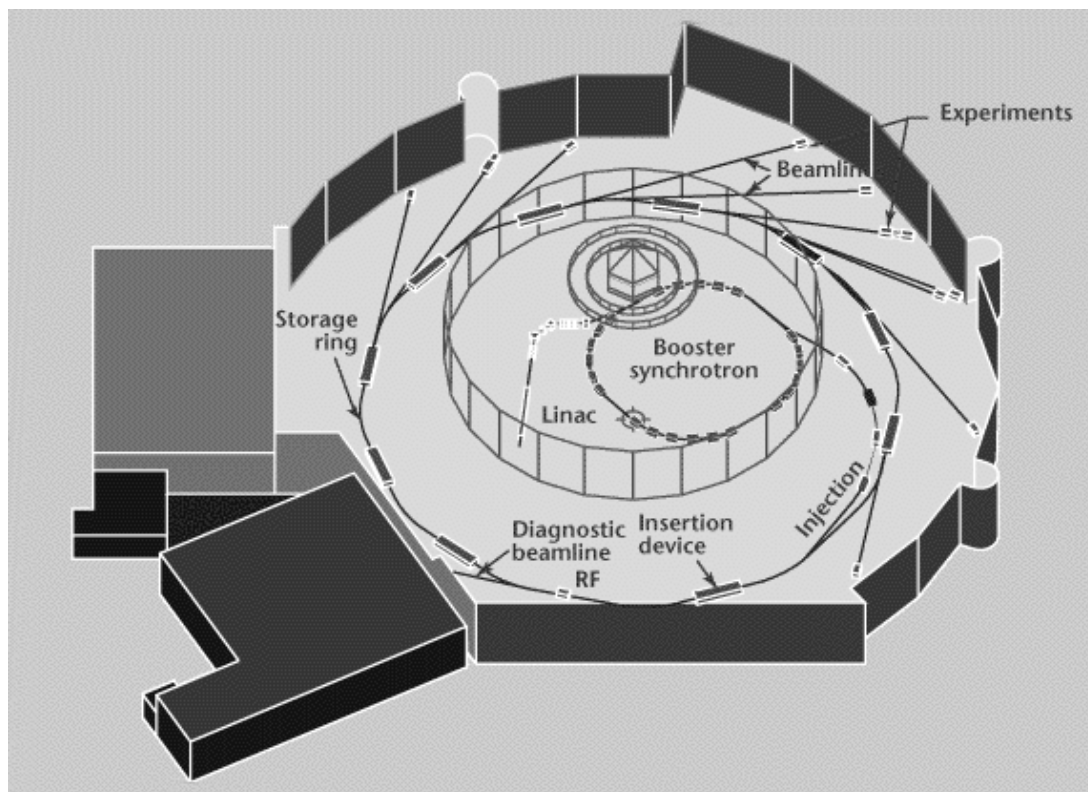


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Synchrotronstrahlenquelle „Advanced Light Source“, aus [86].

### 3.3 Erzeugung von Synchrotronstrahlung

#### Anforderung an das Projektil

Da das COLTRIMS-Meßprinzip auf der Flugzeitmessung der geladenen Teilchen beruht, braucht man einen gepulsten Photonen-Strahl. Des weiteren muß es möglich sein, sowohl die Energie mit einer Energieauflösung von weniger als 1 eV als auch die Polarisierung der Strahlung einzustellen: linear und zirkular (links/rechts) polarisiertes Licht, um den vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium für beide Polarisierungen messen zu können. Des weiteren müssen die einzelnen Photonenpakete eine minimale zeitliche Differenz aufweisen<sup>3</sup>.

All diese Eigenschaften vereinigt Beamline<sup>4</sup> 4.0.2 [87, 88, 89] der Advanced Light Source des Lawrence Berkeley National Laboratory (USA), wenn der Beschleuniger im double-bunch-mode<sup>5</sup> betrieben wird.

<sup>3</sup>Diese minimale zeitliche Differenz ergibt sich aus der Flugzeit der einzelnen Teilchen.

<sup>4</sup>Beamline ist die englische Bezeichnung für Strahlrohr.

<sup>5</sup>Information zum „double-bunch-mode“ findet sich im übernächsten Abschnitt „Strahl-Modi“.

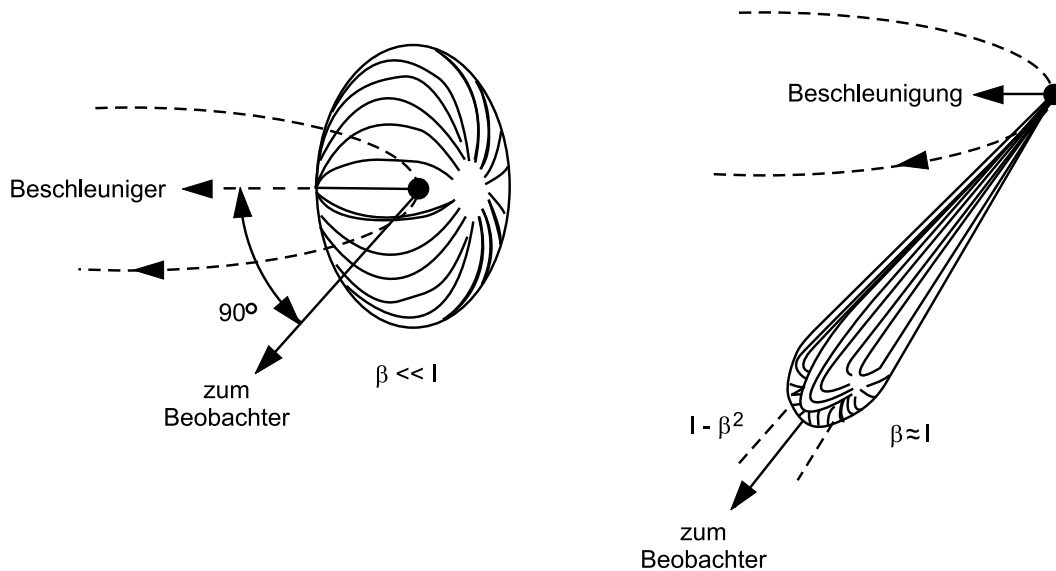


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Strahlungscharakteristik für Geschwindigkeiten  $v \ll c$  (links) und  $v \approx c$ ; aus [12].

### Funktionsweise einer Synchrotronstrahlenquelle

Eine Synchrotronstrahlenquelle basiert auf dem Prinzip, daß beschleunigte elektrische Ladungen elektromagnetische Strahlung aussenden. Diese Strahlung, für die es weltweit mehr als 40 Laboratorien [90] gibt, war zunächst ein Nebeneffekt bei Ringbeschleunigungsanlagen. Heutzutage gibt es vielfältige Synchrotronstrahlenquellen, die man in erste, zweite oder dritte Generation einteilt. Sie unterscheiden sich im wesentlichen in der Brillanz, die ein Maß für die Anzahl der Photonen pro Fläche, Raumwinkel, Energieintervall und Zeit ist; die Brillanz ist bei der dritten Generation am größten.

Bei der Advanced Light Source, die eine Synchrotronstrahlenquelle der dritten Generation ist, werden Elektronenpakete erst in einem Linearbeschleuniger und danach in einem sog. Booster-Synchrotron (siehe Abbildung 3.3) vorbeschleunigt und dann in einen Speicherring injiziert. Die Lebensdauer des Strahls ist durch Stöße mit dem Restgas sowie Streuung im Strahl begrenzt. Daher muß der Ringbeschleuniger im Abstand weniger Stunden mit Elektronenpaketen neu aufgefüllt werden.

Regelmäßig angeordnete Ablenkmagnete zwingen die Elektronenpakete auf Kreisbahnen. Die Elektronen senden dort elektromagnetische Strahlung aus. Die dadurch verlorene Energie muß den Elektronen wieder zugefügt werden, damit sie auf ihrer Soll-Umlaufbahn bleiben. Die Elektronen werden dabei fast bis auf Lichtgeschwindigkeit beschleunigt: Dies hängt nicht nur mit einer erhöhten Leistungsabgabe ( $P \propto E_\gamma^4$ ) zusammen, sondern auch mit der Abstrahlcharakteristik.

Im Bezugssystem der Elektronen wird die elektromagnetische Strahlung dipolförmig emittiert. Langsame Elektronen emittieren einen „Strahlungsreifen“ (Abbildung 3.4). Bei sehr schnellen Elektronen treten relativistische Effekte auf, die eine Abstrahlung in einem

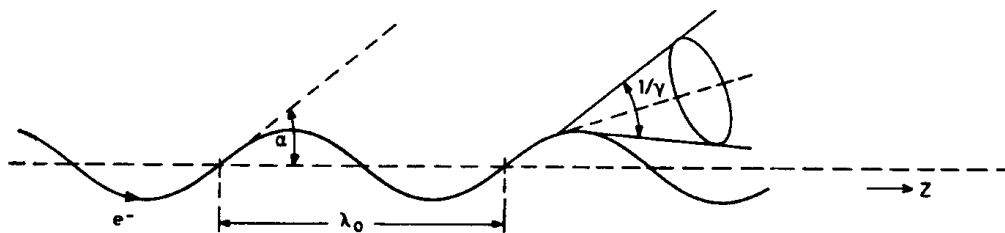


Abbildung 3.5: Bahn der Elektronen in einem Wiggler oder Undulator,  $\lambda_0$  ist die Periodenlänge,  $\alpha$  ist der maximale Ablenkswinkel und  $1/\gamma$  ist der Öffnungswinkel des Strahlungskonus, aus [91].

engen Konus entlang des Elektronenstrahls bewirken. Dieser Abstrahlkonus ermöglicht eine höhere Brillanz.

### Strahl-Modi

Mit einer Synchrotronstrahlenquelle kann man einzelne Lichtpakete<sup>6</sup> (single, bzw. double-bunch) oder auch einen quasi kontinuierlichen Photon-Strahl (multi-bunch) erzeugen. Die Messung wurde im double-bunch-mode durchgeführt. Dabei laufen zwei Elektronenpakete im Ring. Der Zeitabstand zwischen den einzelnen Lichtpaketen liegt dabei konstant bei 328 ns. Der double-bunch-mode führt zwar zu einer geringeren Intensität gegenüber dem quasi kontinuierlichen Strahl; der Vorteil liegt aber darin, daß in konstanten Zeitabständen (in diesem Fall alle 328 ns) ein Lichtpaket den Jet kreuzt. Da von der Synchrotronstrahlenquelle ein Bunchmarker-Signal mitgeliefert wird, erhält man zu jeder Reaktion ein Referenzsignal, das für die Flugzeitmessung benötigt wird.

### Spezielle Synchrotron-Komponenten

Um die Strahlungsausbeute zu erhöhen, werden in modernen Synchrotronanlagen der zweiten und dritten Generation neben einfachen Ablenkmagneten weitere Magnetstrukturen wie Undulatoren und Wiggler eingesetzt.

Wiggler und Undulatoren sind im wesentlichen gleich aufgebaut: Sie bestehen aus einer Abfolge von abwechselnd gepolten Magnetfeldern, die die Elektronen auf eine „schlangenförmige“ Bahn zwingen (Abbildung 3.5).

Bei einem **Wiggler** ist der Winkel  $\alpha$ , der den maximalen Winkel zwischen der Elektronenbahn und der  $z$ -Achse darstellt, groß gegen den  $1/\gamma$ -Strahlungskonus. Im Vergleich zum Ablenkmagnet wird eine um den Faktor  $N$  größere Strahlungsintensität mit ähnlicher spektraler Verteilung erzeugt.  $N$  ist hierbei die Anzahl der periodisch wiederkehrenden Magnetstrukturen.

<sup>6</sup>Zwischen den einzelnen Lichtpaketen liegt eine Dunkelphase von 328 ns.

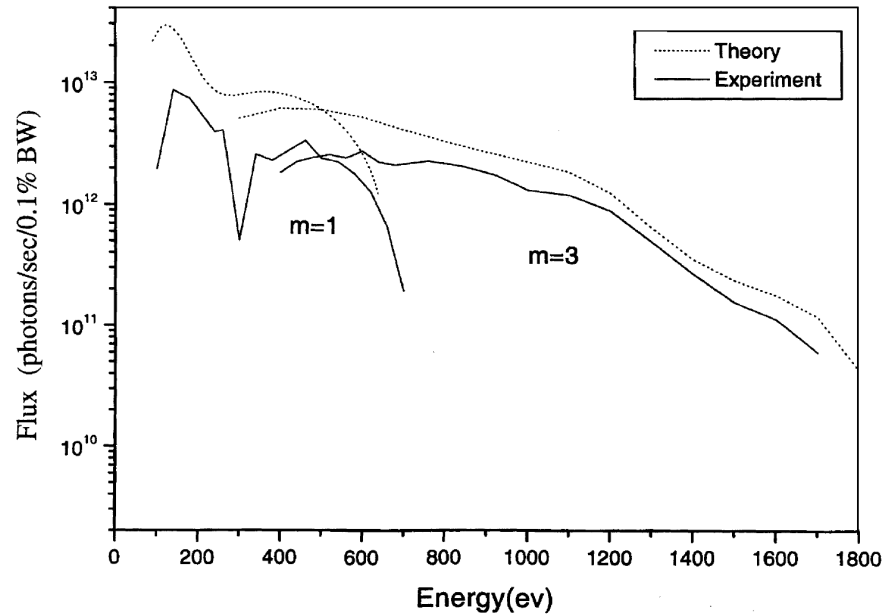


Abbildung 3.6: Gerechneter und gemessener Fluß an Beamline 4.0.2 der Advanced Light Source, aus [87].

Beim **Undulator** ist die Auslenkung der Elektronen kleiner ( $\alpha < 1/\gamma$ ). Dadurch können Interferenzeffekte entstehen, die gezielt zur Erhöhung der Intensität genutzt werden. Elektromagnetische Wellen, die im Abstand von einer Periode der Magnetstruktur  $\lambda_0$  emittiert werden, überlagern sich konstruktiv. Dadurch wird ein relativ schmales Intensitätsmaximum erzeugt. Um Photonen mit unterschiedlichen Energien erzeugen zu können, muß die Magnetfeld-Stärke innerhalb der Undulatoren variabel sein. Eine Änderung der Magnetfeldstärke wird durch Variation des vertikalen Abstandes, dem sog. Gap, zwischen den Magnetreihen erreicht.

Abbildung 3.6 zeigt den an Strahlrohr 4.0.2 mit dem Elliptically Polarized Undulator EPU5 erzeugten Fluß der Photonen. Der Fluß ist ein Maß für die Anzahl der Photonen pro Zeit und pro Energieintervall.

### Beamline 4.0.2

Abbildung 3.7 zeigt eine Skizze von Beamline 4.0.2, die eine Energie-Reichweite von 50 eV bis 1800 eV aufweist. An dieser Beamline befindet sich ein Elliptically Polarized Undulator, mehrere Spiegel und ein Monochromator. Im folgenden wird auf die einzelnen Komponenten näher eingegangen:

An Beamline 4.0.2 ist ein Elliptically Polarized Undulator mit 37 Perioden und einer Undulatorperiode<sup>7</sup> von 5 cm Länge (EPU5)<sup>8</sup>; dieser ist nach dem Sasaki-Verfahren [92]

<sup>7</sup>Die Strecke, nach der das Magnetfeld in einem Undulator wieder seinen ursprünglichen Wert annimmt, heißt Undulatorperiode.

<sup>8</sup>die Zahl „5“ steht für eine Periodenlänge von 5 cm

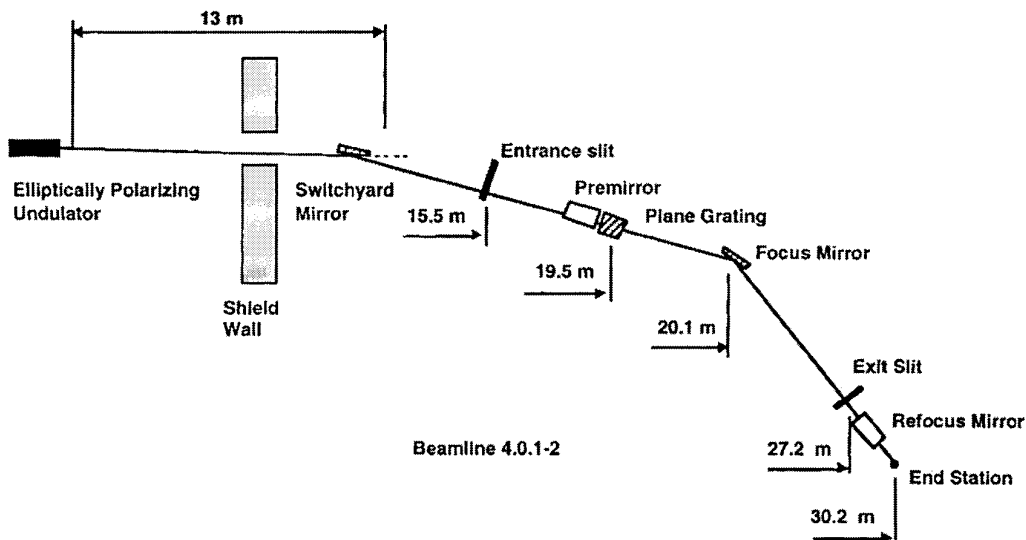


Abbildung 3.7: Skizze von Beamline 4.0.2, aus [89]

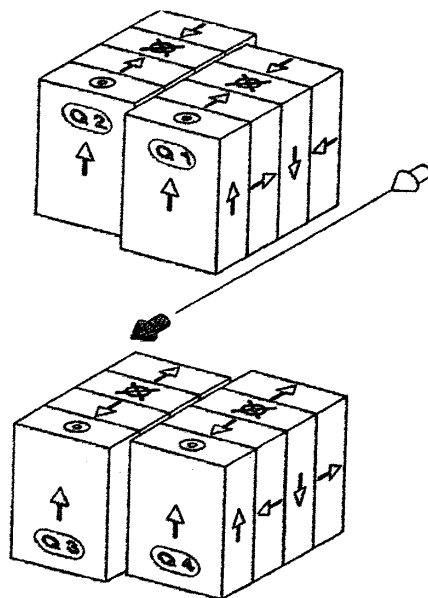


Abbildung 3.8: Skizze der Anordnung der Permanentmagnete für den Elliptically Polarized Undulator (EPU5), der nach dem Sasaki-Verfahren [92] konstruiert wurde, aus [89]. Q1 bis Q4 sind die vier magnetischen Komponenten.

gebaut (Abbildung 3.8). Die Struktur besteht aus vier zueinander verschiebbaren magnetischen Komponenten.

Indem man die relative Position dieser vier Komponenten variiert, kann die Polarisation vom Experimentator selbst innerhalb weniger Sekunden ausgewählt werden. Dabei werden zwei gegenüber liegende Strukturen gleichzeitig gegenüber den anderen beiden verschoben. Je nach Verschiebung erhält man horizontal oder vertikal polarisiertes Licht,



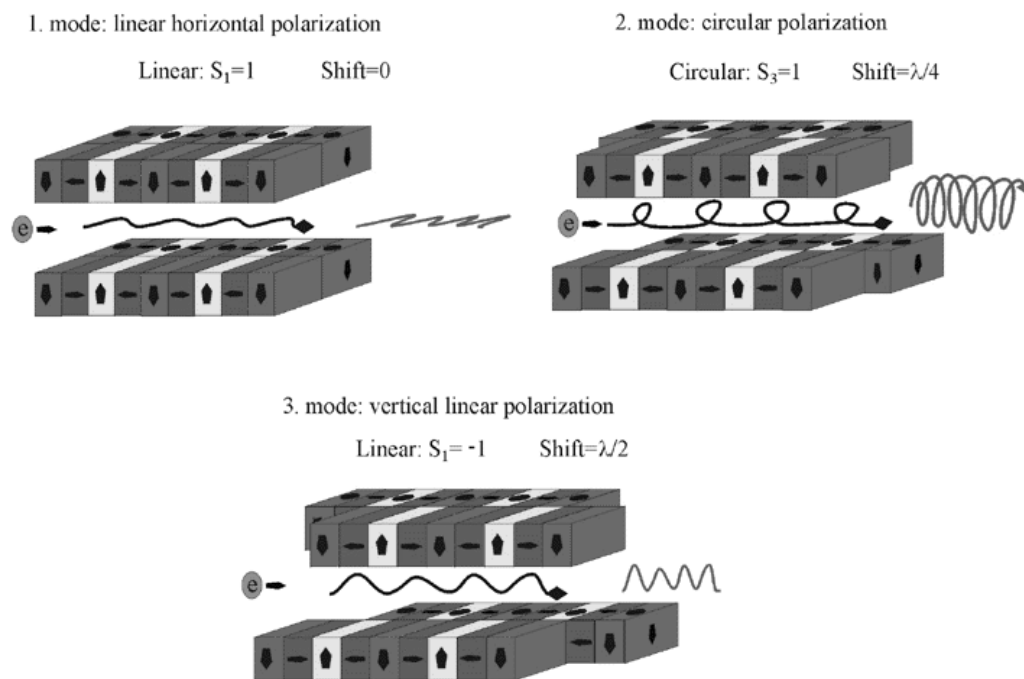


Abbildung 3.9: Skizze der verschiedenen Betriebsmodi eines EPU, aus [93]. Je nach gewünschter Polarisation werden die Blöcke mit den Permanentmagneten zueinander verschoben.  $\lambda$  bezeichnet hier die Undulatorlänge.

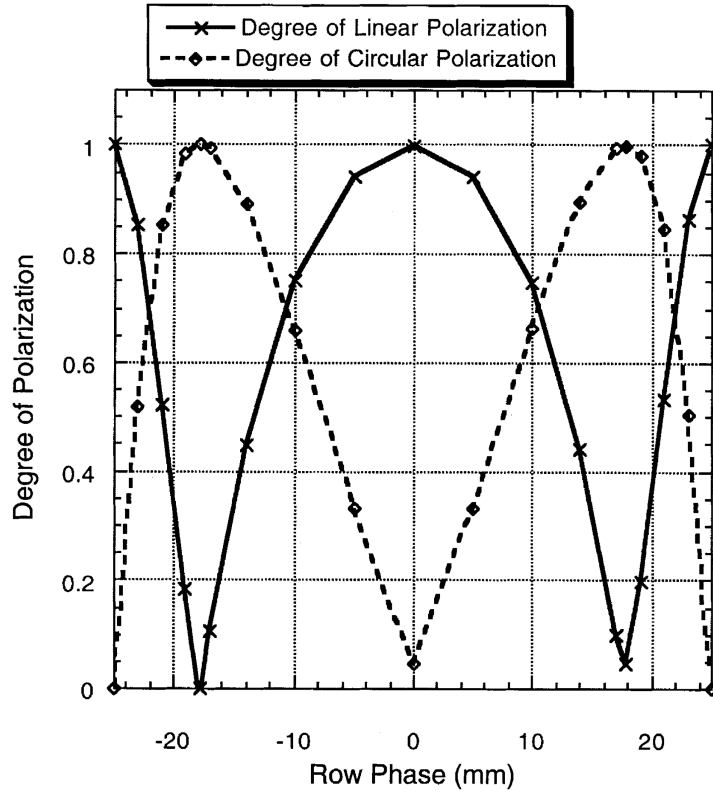


Abbildung 3.10: Aufgetragen ist der Grad der Polarisation der Photonen an Beamline 4.0.2 gegen die Verschiebung. Die Messung wurde bei einer Energie von 460 eV durchgeführt, aus [87].

rechts oder links zirkular oder auch elliptisch polarisiertes Licht. Abbildung 3.9 zeigt drei verschiedene Betriebsmodi eines EPU.

Jeder Polarisationszustand wird durch den sogenannten Stokes-Vektor beschrieben. Die erste Komponente enthält die Intensität des Lichtstrahles, die Komponenten  $S_{1,2,3}$  charakterisieren die Art der Polarisation:

$$S_{Stokes} = I_{tot} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \quad (3.1)$$

$I_{tot}$  ist hierbei die Totalintensität,  $S_{1,2,3}$  sind die Stokes-Parameter und folgendermaßen definiert:

$$S_1 = \frac{I_x - I_y}{I_{tot}} \quad (3.2)$$

$$S_2 = \frac{I_1 - I_2}{I_{tot}} \quad (3.3)$$

$$S_3 = \frac{I_{right} - I_{left}}{I_{tot}} \quad (3.4)$$

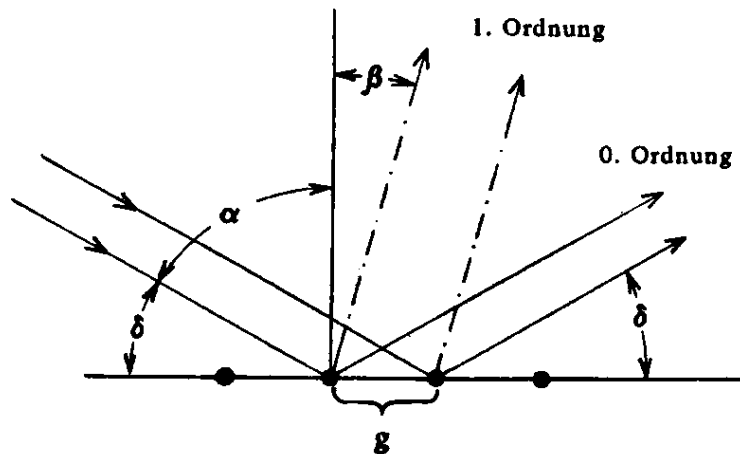


Abbildung 3.11: Funktionsprinzip eines Monochromators, aus [94].

$I_x$  und  $I_y$  sind die Intensitäten in  $x$ - und  $y$ -Richtung.  $I_1$  und  $I_2$  sind die Intensitäten in einem um  $45^\circ$  gedrehten Koordinatensystem;  $S_2$  ist also ein Parameter, der eine Drehung der Polarisationssebene berücksichtigt.  $S_3$  gibt den normierten zirkularen Anteil der Strahlung wieder.

Vollständig linear horizontal polarisiertes Licht trägt demnach den Stokes-Parameter  $(1,1,0,0)$  und vertikal polarisiertes Licht den Parameter  $(1,-1,0,0)$ . Rechts zirkular polarisiertes Licht wird durch den Parameter  $(1,0,0,1)$  und links zirkular polarisiertes durch  $(1,0,0,-1)$  charakterisiert.

Abbildung 3.10 zeigt den Stokes-Parameter für linear und zirkular polarisiertes Licht in Abhängigkeit von der Verschiebung der magnetischen Komponenten vom Elliptically Polarized Undulator EPU5 am Strahlrohr 4.0.2.

Nach Erzeugung dieser charakteristischen Strahlung trifft der Strahl auf einen Spiegel, der den Strahl durch einen Eintrittsspalt in den Monochromator lenkt, der aus dem erzeugten, breiten Energieband ein schmales Energie-Intervall<sup>9</sup> selektiert. Das nun monochromatisierte Licht wird wiederum auf einen fokussierenden Spiegel gerichtet, der den Strahl in die Kammer lenkt. Der Photonenstrahl tritt in das Spektrometer ein, durchkreuzt es und gelangt dann in ein langes Rohrstück, den Beamdump.

### Der Monochromator

Das Monochromator-System besteht im wesentlichen aus einem Vorspiegel, einem nachfolgend ebenen, rotierbaren Gitter und einem weiteren Spiegel. Dieser Monochromator funktioniert nach dem Prinzip der Beugung an Gittern (Abbildung 3.11). Zwischen einem gegebenen Einfallswinkel  $\alpha$  und dem Ausfallswinkel  $\beta$  gilt folgende Beziehung, wobei

<sup>9</sup>und somit eine einzigen Wellenlänge, bzw. Farbe

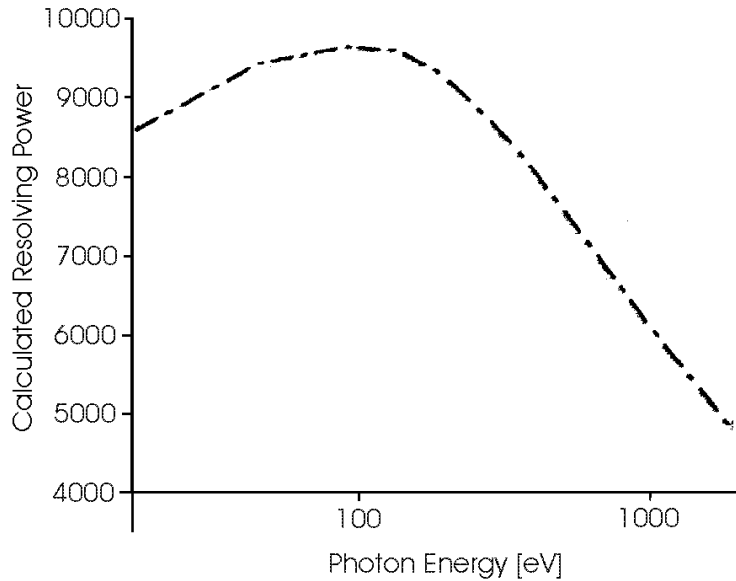


Abbildung 3.12: Errechnete Energieauflösung in Abhängigkeit von der Photon-Energie am Strahlrohr 4.0.2, aus [89].

$\lambda_\gamma$  die Wellenlänge des Lichtes und  $g$  die Gitterkonstante ist.

$$g \cdot \sin \alpha - g \cdot \sin \beta = n \cdot \lambda_\gamma \quad (3.5)$$

Aus dem aufgefächerten Frequenzspektrum kann nun die gewünschte Frequenz mit einer schmalen Blende selektiert werden. Das bei Beamline 4.0.2 verwendete Gitter besitzt 700 Linien pro Millimeter [95].

Die erreichbare Auflösung beträgt je nach Photon-Energie zwischen 1/5000 und 1/10000 (Abbildung 3.12). Da der Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation 450 eV über der Schwelle unter 0,1 kbarn liegt, wurden die Schlitze recht weit aufgedreht, so daß die tatsächliche Auflösung zwischen 1/500 und 1/1000 lag. Diese Auflösung beeinträchtigt nicht die Messung, da die Energieauflösung des Spektrometers schlechter als die der Photonen ist.

### 3.4 Das Target

An das Gastarget werden zwei Anforderungen gestellt: Es muß in Strahlrichtung gut lokalisiert sein, und die interne Temperatur muß so klein sein, daß die thermische Bewegung vernachlässigbar klein gegenüber den Impulsen der Elektronen ist.

Der Überschallgasjet wird in der zweistufigen Quell-Kammer erzeugt. Das Gas expandiert adiabatisch in die erste Stufe durch eine Düse mit einem Durchmesser  $d = 30 \mu\text{m}$  bei einem Druck von 13 bar. Da innerhalb der Expansionskammer ein Druck

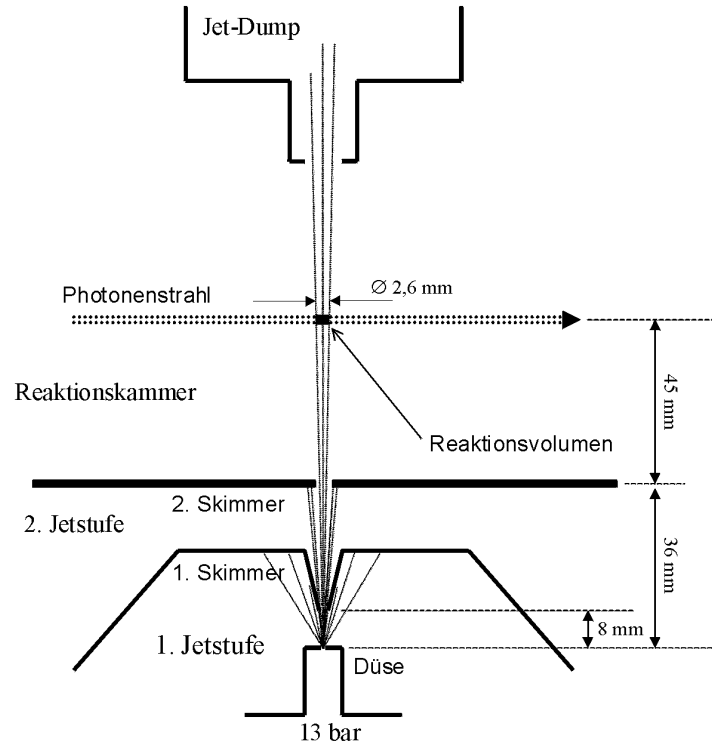


Abbildung 3.13: Schematische Darstellung des Jet-Systems, teilweise aus [96]. Die beiden Skimmer schälen einen Teil vom Gasjet heraus. In der Reaktionskammer wechselwirken die Heliumatome mit den Photonen. Die Gasatome, die keine Wechselwirkung eingegangen sind, werden im Jet-Dump aufgefangen und abgesaugt. Der Durchmesser des ersten Skimmers beträgt  $d = 0,3 \text{ mm}$ , der vom zweiten Skimmer  $d = 1 \text{ mm}$ .

von etwa  $10^{-3} \text{ mbar}$  herrscht, muß bei der Expansion des Gases praktisch keine Arbeit verrichtet werden. Damit kann die gesamte Enthalpie, die im Mittel einem Gasteilchen zur Verfügung steht, in gerichtete Bewegung umgewandelt werden. Diese berechnet sich zu:

$$v_{jet} = \sqrt{5kT_0/m} \quad (3.6)$$

$k$  steht für die Boltzmann-Konstante,  $m$  für die Masse des Gasteilchens und  $T_0$  für die Temperatur des Gases vor der Expansion.

Bei adiabatischer Expansion kühlt sich das Gas ab ohne aus der Umgebung Wärme aufzunehmen. Aufgrund des Restdruckes in der Quellschleife bildet sich nur eine räumlich begrenzte Zone von einigen Millimetern Länge aus, in der sich die Helium-Atome nahezu ohne Stöße bewegen (zone-of-silence). Im Randbereich wird das Gas durch Wechselwirkung mit dem Restgas abgebremst und die gerichtete Bewegung wird zerstört.

Durch eine speziell geformte Blendenöffnung an der Spitze eines Hohlkegels (Skimmer), der in die wechselwirkungsfreie Zone eintaucht, wird ein kleiner Teil des Gasjets abgetrennt. Der Skimmer der ersten Stufe hat eine Öffnung von  $0,3 \text{ mm}$  Durchmesser und

befindet sich in einem Abstand von 8 mm zur Düsenöffnung. Dieser Abstand gewährleistet bei einem Druck von  $10^{-3}$  mbar und einem Vordruck von 13 bar, daß sich der Skimmer innerhalb der zone-of-silence befindet.

Dieser, durch den ersten Skimmer herausgeschälte Teil bildet einen Strahl, der sich in der anschließenden zweiten Stufe bei besserem Grundvakuum ohne Wechselwirkung mit dem Restgas weiter aufweitet. Vor dem Eintritt in die Reaktionskammer wird er mit einem zweiten Skimmer, der einen Abstand von 36 mm zur Düse hat, auf einen Durchmesser von 1 mm ausgeblendet. Diese Geometrie gewährleistet einen Jet, der in der Reaktionszone einen Durchmesser von etwa 2,6 mm besitzt (Abbildung 3.13).

Bei der Justage der Düse und der beiden Skimmer muß darauf geachtet werden, daß die Düse und die beiden Skimmer mit dem Targetort in einer Linie liegen. Obwohl dies die Justage deutlich erschwert, hat ein zweistufiger Jet den großen Vorteil, daß der Anteil des warmen Restgases wesentlich reduziert ist.

Die Target-Dichte in der Wechselwirkungsregion läßt sich aus der Jetgeschwindigkeit, dem Druckanstieg im Jetdump und der Saugleistung der verwendeten Pumpe ermitteln. Da der Jet nicht vorgekühlt ist, haben die Atome eine Geschwindigkeit<sup>10</sup> von 1760 m/s, was einem Impuls der Heliumatome von 5,9 a.u. entspricht. Die ermittelte Targetdichte beträgt etwa  $1 \cdot 10^{11}$  pro  $\text{cm}^2$ .

Die Temperatur des Überschallgasjets kann durch das sog. Speedratio  $S$  angegeben werden. Das Speedratio gibt das Verhältnis zwischen Düsentemperatur und interner Temperatur an. In Abbildung 3.14 ist das Speedratio  $S$  gegen das Produkt aus Düsendurchmesser und Vordruck aufgetragen. Die interne Temperatur des Jets nach der Expansion ergibt sich in Jetrichtung aus dem Speedratio  $S$  zu

$$T = \frac{5}{2} \frac{T_0}{S^2} \quad (3.7)$$

Das Speedratio für den verwendeten Jet beträgt etwa 30 [97], woraus sich nach [98] eine Impulsunschärfe (FWHM) in Jetrichtung von ca. 0,3 a.u. ergibt. Transversal errechnet sich die Impulsschärfe aus der Jetgeschwindigkeit und der durch die Geometrie der Skimmer und der Düse gegebenen Divergenz des Atomstrahls zu weniger als 0,17 a.u..

Da der Durchmesser des Photon-Strahls wesentlich geringer ist als die Targetausdehnung, bezieht sich die oben angegebene Impulsschärfe von 0,17 a.u. nur auf die Richtung parallel zur Photon-Ausbreitung. Senkrecht ist sie durch den geringen Beam-Durchmesser kleiner (zu sehen in Kapitel 4.2.3).

Nur ein Bruchteil der Heliumatome im Jet wechselwirkt mit den Photonen. Der Rest muß, um nicht den Druck in der Kammer zu erhöhen, aus der Reaktionskammer entfernt werden. Dazu dient ein Jet-Dump, ein langes Rohr mit einer Eintrittsöffnung, die für den

---

<sup>10</sup>Diese Geschwindigkeit muß bei der Planung des Spektrometers berücksichtigt werden. Ist der zylindrische Hohlkörper zu klein dimensioniert und/oder das elektrische Feld zu schwach, so gelangen die kalten Ionen nicht auf den Ionen-Detektor.

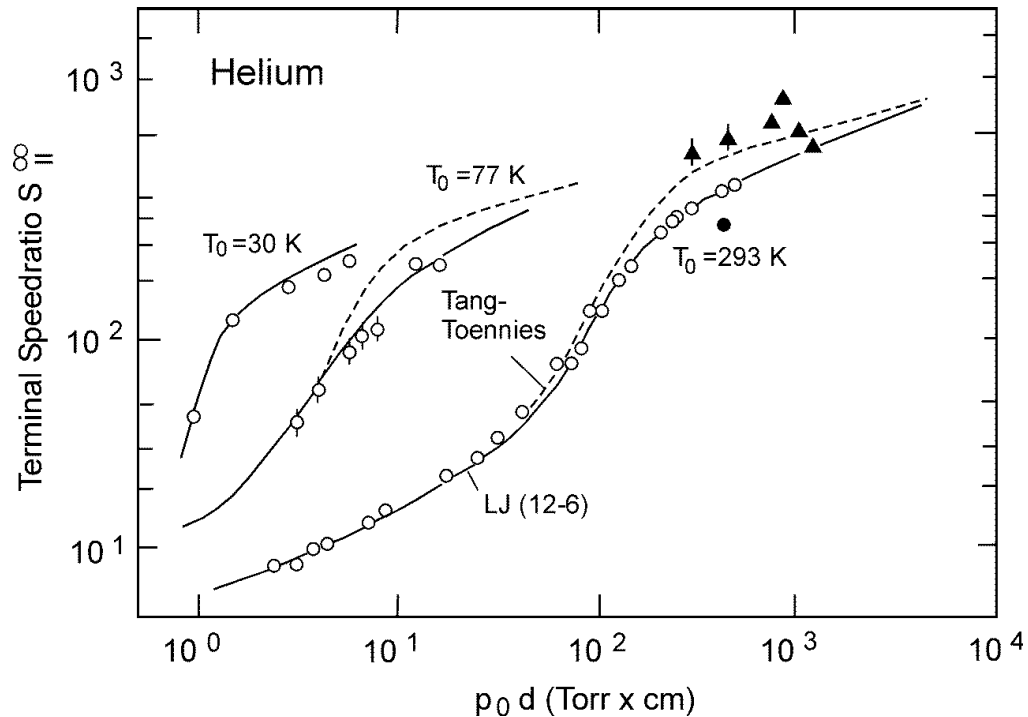


Abbildung 3.14: Speedratio-Kurven für einen Helium-Überschalljet in Abhängigkeit vom Produkt aus Vor- und Düsendurchmesser für verschiedene Gastemperaturen  $T_0$ , aus [97].

Jet gerade groß genug ist. Im Anschluß an dieses Rohr befindet sich eine Turbomolekularpumpe mit einer Saugleistung von  $220 \ell/s$ .

## 3.5 Das Spektrometer

Die Aufgabe des Spektrometers ist, die aus der Photodoppelionisation entstandenen geladenen Teilchen mit einem elektrischen und einem magnetischen Feld auf die entsprechenden Detektoren zu projizieren, so daß aus den Flugzeiten und den Auftrefforten auf die Impulse geschlossen werden kann.

### 3.5.1 Anforderungen an das Spektrometer

Wünschenswert sind folgende Eigenschaften des Spektrometers: gute Impulsauflösung, Nachweis des gesamten Phasenraums im Endzustand. Für die Doppelionisation bei 100 eV und 450 eV heißt dies, daß Elektronen bis zu 225 eV im vollen Raumwinkel detektiert werden müßten. Da die Maße der Kammer und die der Detektoren vorgegeben waren und somit eine wesentliche Vergrößerung des Spektrometers nicht in Frage kam, mußte ein Kompromiß geschlossen werden, um eine Impulsauflösung zu gewährleisten, die eine physikalische Aussage zuläßt.

Da das Ziel der Messung unter anderem darin bestand, die Gültigkeit der Wannier-Näherung bei 100 eV zu untersuchen, muß hierfür der komplette Phasenraum im Endzustand gemessen werden, um die Summen- und Differenzimpulse der beiden Elektronen im Schwerpunktssystem untersuchen zu können.

Ein wesentliches Ziel der Messung bei 450 eV war die Untersuchung zur Dominanz der beiden Mechanismen in Abhängigkeit von der Energieaufteilung. Da auch die Rechnung von Hino [35] eine stark asymmetrische Energieaufteilung erwarten läßt, wurde das Spektrometer so konzipiert, daß alle Elektronen bis zu 60 eV im vollen Raumwinkel detektiert wurden. Dafür wird dem elektrischen Feld ein magnetisches überlagert.

Das Spektrometer besteht aus zwei Teilen: einem für die Elektronen (Abstand von der Target-Region zum Elektrondetektor: 192 mm, nachfolgend wird dieser Teil Elektron-Spektrometer genannt) und einem anderen für die Helium-Ionen (Abstand von der Target-Region zum Ionen-Detektor: 639 mm, nachfolgend wird dieser Teil Rückstoßionen-Spektrometer genannt). Überlagert ist ein konstantes homogenes Magnetfeld, das durch ein Helmholtz-Spulenpaar erzeugt wird [84]. Ein weiteres Spulenpaar (Kompensations-spulenpaar) ist parallel zur Jetrichtung angebracht, so daß man mit dessen Magnetfeld die vertikale Erdmagnetfeldkomponente kompensieren kann.

### 3.5.2 Rückstoßionen-Spektrometer

Das elektrostatische Rückstoßionen-Spektrometer besteht aus einem homogenen Extraktionsfeld, gefolgt von einer elektrostatischen Linse und einer fast feldfreien Drift-Strecke. (Die Drift-Strecke ist vom Rückstoßionendetektor durch ein Gitter mit einer Maschenweite von  $250\text{ }\mu\text{m}$  getrennt.) Dieser Feldverlauf gewährleistet eine gute Impulsauflösung. Ohne die Linse würden gleich geladene Rückstoßionen, die mit dem gleichen Impuls, aber von unterschiedlichen Orten innerhalb der Wechselwirkungszone starten, unterschiedliche Trajektorien mit unterschiedlichen Flugzeiten und unterschiedlichen Auftrefforten auf dem Detektor haben. Dies würde die Impulsauflösung signifikant beeinträchtigen.

Abbildung 3.15 zeigt eine Simulation der Abbildungscharakteristik des Rückstoßionen-Spektrometers: Gezeigt werden die Trajektorien der doppelt geladenen Heliumionen, die mit einem Impuls von 3 a.u. in Richtung der Spektrometerachse emittiert werden. Obwohl sie gleichzeitig von unterschiedlichen Punkten aus starten, werden sie zu einem einzigen Punkt in derselben Zeit fokussiert.

Dieses Verhalten wird durch einen speziellen Feldverlauf realisiert: die Target-Zone liegt in einem konstant homogenen elektrischen Feld von  $7,61\text{ V/cm}$ . Nach 89 mm passieren die Rückstoßionen eine elektrostatische Linse. Nach Passieren der Linse treten die Ionen in eine quasi feldfreie Driftstrecke ein, an deren Ende sich der Rückstoßionendetektor befindet.

Für die Impulsberechnung geht im wesentlichen nur das elektrische Feld am Targetort ein. Vom Prinzip her müßte das magnetische Feld in die Bewegungsgleichungen mitein-



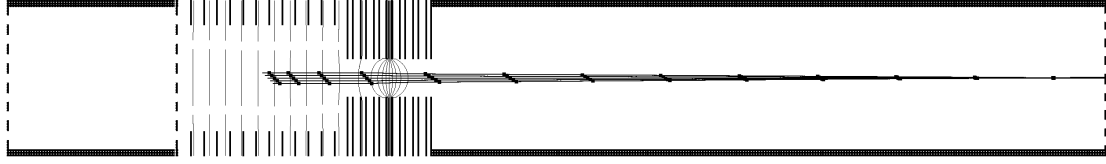


Abbildung 3.15: Simulation des Rückstoßionen-Spektrometers mit Äquipotentiallinien (dünne gestrichelte Linien); Eigenschaften der Ort- und Zeitfokussierung, der Abstand zwischen den Zeitmarkern (volle Quadrate) beträgt  $0,5 \mu\text{s}$ , die Ionen starten mit 3 a.u. in horizontaler Richtung aus einem Reaktionsvolumen von  $8 \text{ mm} \cdot 8 \text{ mm} \cdot 8 \text{ mm}$ . Sie werden auf einen Punkt von  $0,6 \text{ mm} \cdot 0,6 \text{ mm}$  fokussiert, die Zeitdifferenz am Auftreffort beträgt weniger als  $0,5 \text{ ns}$ . Das elektrische Feld in der Target-Zone beträgt  $7,6 \text{ V/cm}$ . Die dick gestrichelten Linien stellen das  $250 \mu\text{m}$  weite Gitter dar.

bezogen werden. Aufgrund der hohen Masse ist die Gyrationperiode wesentlich länger als die Flugzeit der Teilchen<sup>11</sup>.

Weil das Spektrometer Zeitfokussierung gewährleistet und die Ionen-Energien klein gegen die im elektrischen Feld aufgenommene Energie sind, ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Impuls in Flugzeitrichtung und der Flugzeitdifferenz zu Ionen mit Impuls 0. Der Rückstoßionenimpuls in Richtung der Spektrometerachse läßt sich deshalb aus folgender Gleichung berechnen:

$$p_{z,He^{2+}} = \mathcal{E} \cdot q \cdot (t_{He^{2+}} - t_{0,He^{2+}}) \quad (3.8)$$

wobei  $\mathcal{E}$  die elektrische Feldstärke am Ort der Wechselwirkung,  $q$  die Ladung,  $t_{He^{2+}}$  die Flugzeit und  $t_{0,He^{2+}}$  die Flugzeit eines doppelt geladenen Heliumions ist, das mit einem Impuls Null startet. Eine Herleitung findet sich in [99].

Transversal zum elektrischen Feld wirken keine Kräfte auf die geladenen Ionen. Die Impulse lassen sich folgendermaßen berechnen:

$$p_{x,He^{2+}} = \frac{c \cdot m_{He^{2+}} \cdot (x_{He^{2+}} - x_{0,He^{2+}})}{t_{He^{2+}}} \quad (3.9)$$

$$p_{y,He^{2+}} = \frac{c \cdot m_{He^{2+}} \cdot (y_{He^{2+}} - y_{0,He^{2+}})}{t_{He^{2+}}} \quad (3.10)$$

wobei  $x_{He^{2+}}$  und  $y_{He^{2+}}$  die Komponenten des Auftreffortes des Teilchens sind und  $x_{0,He^{2+}}$  und  $y_{0,He^{2+}}$  die Ortskomponenten eines Teilchen, das - unter Berücksichtigung der Jetgeschwindigkeit - mit einem Impuls von Null gestartet ist.  $c$  ist ein durch die Linse bedingter Eichfaktor.

<sup>11</sup>In der Datenanalyse stellte sich heraus, daß das Magnetfeld eine geringfügige Drehung der Impulskugel um die Spektrometerachse bewirkte.

Augrund der langen Flugzeiten gegenüber den Flugzeit-Differenzen für verschiedene Impulse nimmt man in der Praxis eine konstante Flugzeit an.

Da die Impulse in  $x$  und  $y$  unabhängig von der Flugzeit-Differenz sind, und die Impulskomponente in  $z$ -Richtung eine Funktion der Flugzeitdifferenz ( $t_{He^{2+}} - t_{0,He^{2+}}$ ) ist, lassen sich die obigen Gleichungen auch wie folgt ausdrücken:

$$p_{x,He^{2+}} = c_{x,He^{2+}} \cdot (x_{He^{2+}} - x_{0,He^{2+}}) \quad (3.11)$$

$$p_{y,He^{2+}} = c_{y,He^{2+}} \cdot (y_{He^{2+}} - y_{0,He^{2+}}) \quad (3.12)$$

$$p_{z,He^{2+}} = c_{z,He^{2+}} \cdot (t_{He^{2+}} - t_{0,He^{2+}}) \quad (3.13)$$

Bei bereits durchgeführter Detektor-Kalibrierung gilt:  $c_{x,He^{2+}} = c_{y,He^{2+}}$ . Sind die drei Nullpunkte  $t_{0,He^{2+}}$ ,  $x_{0,He^{2+}}$  und  $y_{0,He^{2+}}$  sowie die drei Kalibrationsfaktoren  $c_{x,He^{2+}}$ ,  $c_{y,He^{2+}}$  und  $c_{z,He^{2+}}$  bekannt<sup>12</sup>, so kann für jedes Event der dreidimensionale Impulsvektor der Heliumkerne ermittelt werden.

Da die Elektronen eine 7300 mal so große Energie gegenüber den doppelt geladenen Heliumionen haben, werden die Impulskomponenten vom Elektronen-Spektrometer nicht linear abgebildet. Des weiteren bewegen sich die Elektronen auf Zyklotronbahnen. Dies macht die Berechnung der Impulse wesentlich schwieriger, wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird.

### 3.5.3 Elektronen-Spektrometer

Die Elektronen treten nach einer 63 mm langen Extraktionsstrecke in eine 129 mm lange Drift-Strecke ein. Indem man die Drift-Länge doppelt so lang wie die Extraktionsstrecke wählt, werden die Elektronen zeitfokussiert [100]. Zusätzlich ist zu dem elektrischen Feld ein magnetisches von 13 Gauß überlagert, das parallel zum elektrischen Feld verläuft. Dies gewährleistet, daß man alle Elektronen bis 60 eV im  $4\pi$  Raumwinkel mit ausreichender Energieauflösung detektieren kann.

Wegen ihrer geringen Masse werden die Elektronen vom magnetischen Feld auf Zyklotronbahnen gelenkt. Die Impulskomponente parallel zum elektrischen Feld hängt nur vom elektrischen Feld und der damit verbundenen Flugzeit ab.

$$t_e = -\frac{v_e}{a} + \sqrt{\frac{v_e^2 + 2as}{a^2}} + \frac{2s}{\sqrt{v_e^2 + 2as}} \quad (3.14)$$

Hierbei ist  $t_e$  die Elektronenflugzeit,  $v_e$  die Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons,  $a$  die Beschleunigung im Spektrometerfeld und  $s$  die Länge der Extraktionsstrecke. Für die Berechnung der beiden dazu senkrechten Impulskomponenten muß das magnetische Feld  $B$  berücksichtigt werden. Die Elektronen werden mit einem transversalen Impuls

<sup>12</sup>Die Einheit des Kalibrationsfaktors  $c_{z,He^{2+}}$  unterscheidet sich von den anderen beiden.

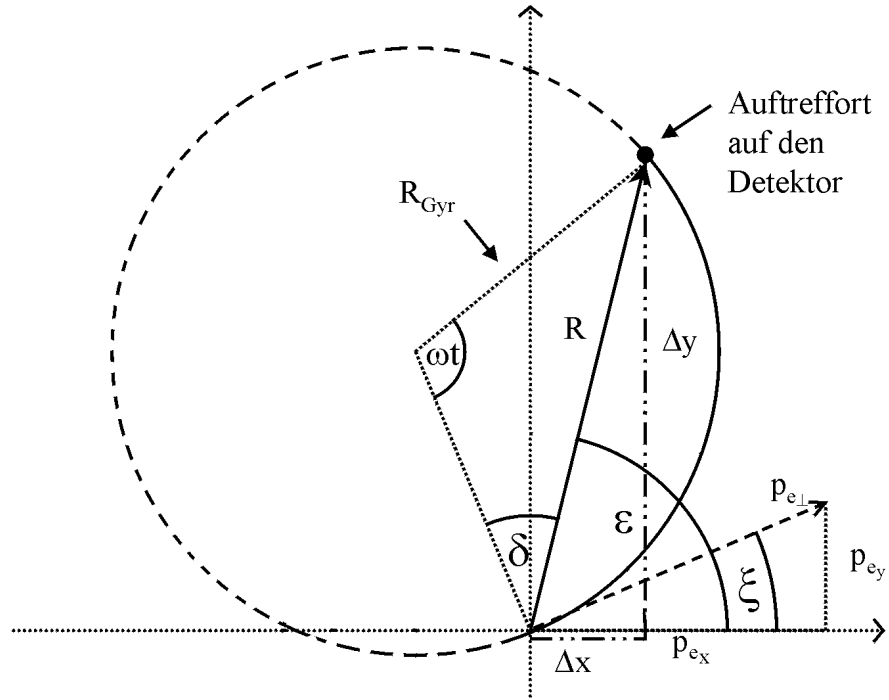


Abbildung 3.16: Projektion der Elektronentrajektorie auf den Detektor. Die Elektronen werden mit einem transversalen Impuls  $p_{e\perp}$  unter einem Winkel  $\xi$  emittiert. Das Elektron trifft nach einer Zeit  $t$  mit einem Abstand  $R$  unter einem Winkel  $\varepsilon$  zur horizontalen Achse den Detektor.

$p_{e\perp}$  unter einem Winkel  $\xi$  emittiert (siehe Abbildung 3.16). Die transversalen Impulskomponenten lassen sich berechnen zu:

$$p_{x,e} = p_{e\perp} \cdot \cos \xi \quad (3.15)$$

$$p_{y,e} = p_{e\perp} \cdot \sin \xi \quad (3.16)$$

Auf dem Weg zum Detektor beschreibt das Elektron eine Zyklotronbahn. Das Elektron trifft nach einer Zeit  $t_e$  mit einem Abstand  $R$  unter einem Winkel  $\varepsilon$  zur horizontalen Achse den Detektor. Ziel ist es, aus dem Abstand  $R$ , dem Winkel  $\varepsilon$  und der Flugzeit  $t_e$  auf die beiden Impulskomponenten  $p_{x,e}$  und  $p_{y,e}$  zu schließen.

Der Transversalimpuls  $p_{e\perp}$  ist eine Funktion der Magnetfeldes  $B$ , des Gyrationradius  $R_{Gyr}$  und der elektrischen Ladung  $q$ :

$$p_{e\perp} = R_{Gyr} \cdot q \cdot B \quad (3.17)$$

Aufgrund geometrischer Überlegungen läßt sich der Gyrationradius aus dem Auftreffort und aus  $(\omega \cdot t_e)$  bestimmen.

$$R_{Gyr} = \frac{\sqrt{\Delta x_e^2 + \Delta y_e^2}}{2 \mid \sin(\omega t_e/2) \mid} \quad (3.18)$$

Setzt man Gleichung 3.18 in Gleichung 3.17 ein, so läßt sich der Transversalimpuls wie folgt berechnen [84]:

$$p_{e\perp} = \frac{q \cdot B \sqrt{\Delta x_e^2 + \Delta y_e^2}}{2 \mid \sin(\omega t_e/2) \mid} \quad (3.19)$$

Hier ist  $\Delta x_e = x_e - x_{0,e}$  und  $\Delta y_e = y_e - y_{0,e}$ ;  $x_e$  und  $y_e$  sind die Komponenten des Auftrefforts, während  $x_{0,e}$  und  $y_{0,e}$  den Auftreffort eines Elektrons mit einem Start-Impuls von Null darstellen.  $B$  ist wieder das magnetische Feld,  $q$  die Elektronenladung und  $\omega$  die Gyrationfrequenz. Das Produkt aus  $\omega \cdot t_e$  ist hier als Divisionsrest von  $\omega \cdot t_e/2\pi$  zu verstehen; also  $\omega \cdot t_e = \text{mod}(\omega \cdot t_e, 2\pi)$ .

Der Winkel  $\xi$  läßt sich aus dem Winkel  $\varepsilon = \arctan(\Delta y/\Delta x)$  und  $(\omega \cdot t_e)/2$  berechnen:

$$\xi = \arctan\left(\frac{\Delta y}{\Delta x}\right) - \frac{\omega \cdot T_e}{2} \quad (3.20)$$

Ist der Transversalimpuls  $p_{e\perp}$  und der Winkel  $\xi$  bekannt, so können die transversalen Impulskomponenten nach Gleichung 3.15 und 3.16 berechnet werden.

Das magnetische Feld läßt sich folgendermaßen ermitteln: Trägt man die Distanz  $R = \sqrt{\Delta x_e^2 + \Delta y_e^2}$  gegen die Flugzeit  $t_e$  auf, so erhält man eine Struktur, wie sie in Abbildung 4.2 zu sehen ist (diese Struktur nennt man Wiggles, von to wiggle = schlängeln). Beträgt die Flugzeit ein ganzzahliges Vielfache der Gyrationperiode, so treffen die Elektronen - unabhängig von ihrem Startimpuls - auf den Ort  $(x_{0,e}; y_{0,e})$ . Daher bildet sich die Wiggle-Struktur aus. Aus dem Abstand der Knoten kann man die Magnitude des magnetischen Feldes ermitteln.

Wann immer Elektronen eine ganzzahlige Anzahl an Umdrehungen vollziehen, treffen sie auf den Detektor an dem Ort, der gleichzeitig die Projektion des Startortes darstellt  $(x_{0,e}; y_{0,e})$ , und zwar unabhängig von ihrem Impuls transversal zum Absaugfeld. Für diese Flugzeiten ist die Information des Transversal-Impulses verloren. Diese Events werden in der Datenanalyse später verworfen.

In unserem Experiment führt dieser Effekt jedoch nicht zu „blinden“ Regionen im Phasenraum: Die Polarisation bei linear polarisiertem Licht verläuft parallel zur Spektrometerachse, die identisch mit der  $z$ -Achse ist; d.h. es gibt eine Spiegel-Symmetrie in bezug zur  $xy$ -Ebene. Das elektrische Feld wird nun so gewählt, daß die Position der Knoten asymmetrisch zu  $t_{0,e}$  liegt. Dies hat den Vorteil, daß die Knoten mit den „gespiegelten“ Impulsen aufgefüllt werden können: der Knoten bei  $p_{z,e} = \zeta_1$  mit einem korrespondierenden  $z$ -Impuls für  $\text{He}^{2+}$ -Ion von  $p_{z,\text{He}^{2+}} = \zeta_2$  kann durch die gespiegelten Impulse von  $p_{z,e} = -\zeta_1$  und  $p_{z,\text{He}^{2+}} = -\zeta_2$  ersetzt werden.

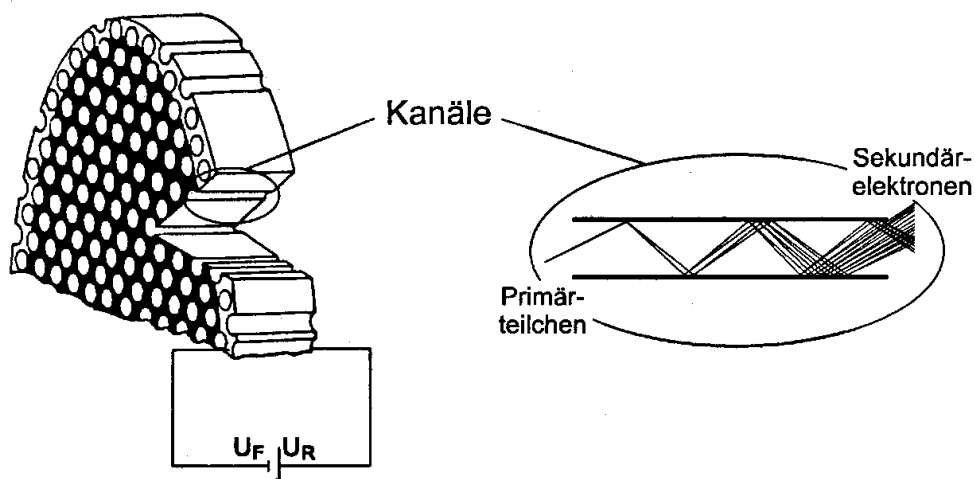


Abbildung 3.17: Ortsempfindliche Elektronenvervielfachung mit einem Micro-Channel-Plate (MCP), aus [101]. Das Channelplate wird über zwei Kontaktringe von der Front- und der Rückseite auf die Potentiale  $U_F$  und  $U_R$  gelegt. Die Potentialdifferenz (typisch 1000 V pro MCP) beschleunigt die Elektronen innerhalb der Kanäle.

## 3.6 Die Detektoren

Die verwendeten Detektoren sind eine Kombination von zwei oder drei Micro-Channel-Plates (Abbildung 3.17) und einer Delay-Line-Anode (Abbildung 3.18). Die Delay-Line-Anode weist den Ort der Elektronenlawine nach, die von den Micro-Channel-Plates erzeugt wurde.

### 3.6.1 Micro-Channel-Plate

Ein Micro-Channel-Plate (MCP) ist eine etwa 0,5 mm dicke Scheibe, in der sich Kanäle von typischerweise 0,025 mm Durchmesser befinden. Für dieses Experiment wurden MCPs mit einem Durchmesser von 80 mm verwendet. Geladene Teilchen, die in einem der Kanäle auf die Oberfläche treffen, lösen dort Elektronen aus. Zwischen Vorder- und Rückseite wird eine Spannung angelegt, so daß in den Kanälen eine Elektronenlawine entsteht. Da die Verstärkung von einem MCP meist nicht ausreicht, werden zwei oder drei MCPs hintereinander geschaltet.

### 3.6.2 Ortsbestimmung durch Laufzeitmessung, die Delay-Line-Anode

Diese Elektronenlawine trifft auf die Delay-Line-Anode. Eine eindimensional ortsauflösende Anode besteht im Prinzip aus einer quadratischen Trägerplatte, um die ein Drahtpaar gewickelt ist, das jedoch zu dieser keinen elektrischen Kontakt hat.

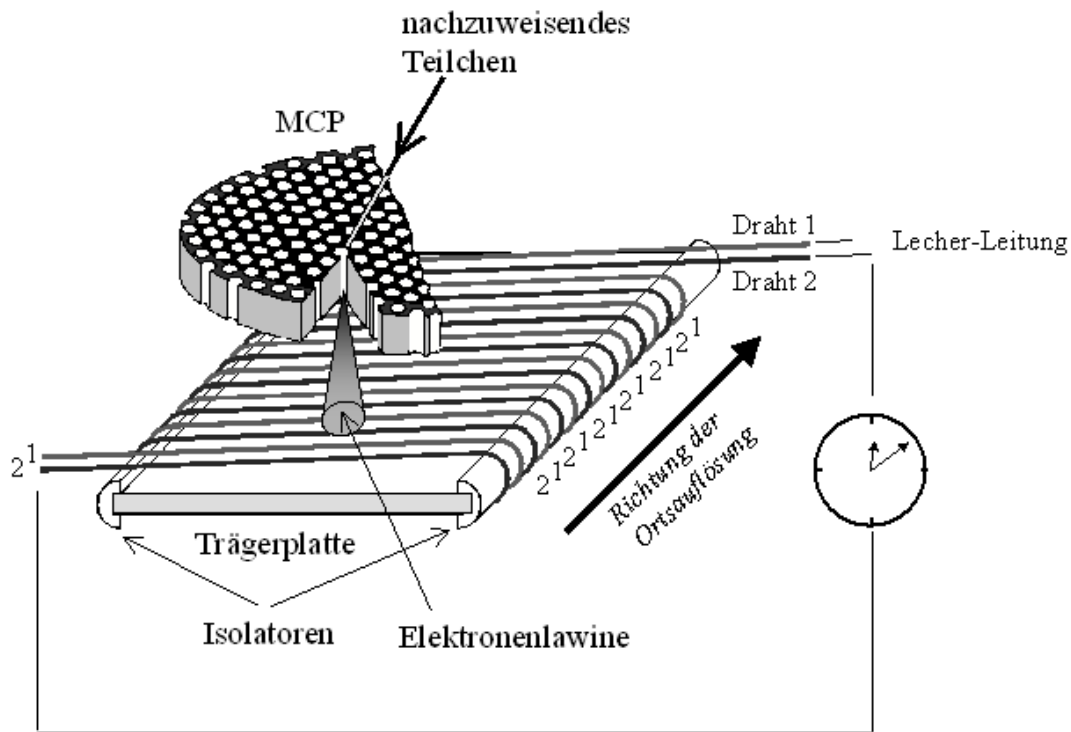


Abbildung 3.18: Skizze eines MCP-Detektors mit eindimensionaler Ortsauslese. Für eine zweidimensionale Ortsauslese wird eine zweite, um  $90^\circ$  gedrehte Drahtebene um die Trägerplatte gewickelt. Teilweise aus [96], Prinzip der Laufzeitmessung in einer Dimension.

Eine Ladungswolke, die auf diese Drahtwicklung trifft, erzeugt dort einen Spannungsimpuls, der sich in beide Richtungen ausbreitet. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der beiden Pulse ist dabei gleich. Da auch die Länge des Drahtes konstant ist, kann bei bekannter Drahtlänge aus den Zeiten, zu denen das jeweilige Signal die beiden Enden der Wicklung erreicht, die Ortsinformation für eine Raumrichtung gewonnen werden. Zum Start der Laufzeitmessung wird das sog. MCP-Signal verwendet; dieses ist mit dem Entstehungszeitpunkt der Ladungslawine zeitlich korreliert, und hängt nicht vom Entstehungsort der Ladungslawine ab. Zwischen den beiden Drähten des Drahtpaares ist eine Spannung von etwa 50 V angelegt. Mit dieser Spannungsdifferenz bildet man eine Lecher-Leitung, so daß die Impulse (so gut wie) keiner Dispersion unterliegen.

Die Elektronenwolke weitet sich zwischen MCP und Anode so auf, daß mehrere Wicklungen getroffen werden, d.h., in jeder Drahtebene entstehen mehrere dicht aufeinanderfolgende Signale. Man bildet den Schwerpunkt dieses Summensignals. Ohne diese Schwerpunktbildung wäre die Ortsauflösung durch den Abstand der Drähte bestimmt. Durch die Bestimmung des Schwerpunkts läßt sich eine Ortsauflösung erreichen, die wesentlich feiner ist als der Abstand der Drähte.

Die Nachweiseffizienz der MCPs für Elektronen und Ionen beträgt nicht 100%, bei

optimal anliegender Spannung von etwa 1000 Volt pro Plate und entsprechender Nachbeschleunigung der Elektronen und Ionen ist die Nachweiseffizienz unabhängig von der Energie des bei diesem Experiment auftretenden Teilchens. Dies ist wichtig, da so der gesamte Phasenraum im Endzustand mit konstanter Effizienz nachgewiesen werden kann. Die Daten können dann auf präzise gemessene Wirkungsquerschnitte normiert werden. Diese Normierung ist wichtig, um das durchgeführte Experiment mit anderen Experimenten oder mit CCC-Rechnungen nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ vergleichen zu können.

## 3.7 Signalverarbeitung

Für die Berechnung der Impulse müssen die Signale der Detektoren und das Bunchmarker-Signal als Referenzzeitpunkt der gesamten Messung ausgelesen werden. Dabei werden die Daten im „listmode“-Verfahren aufgenommen. Dies bedeutet, daß für jedes Ereignis alle Flugzeiten und Detektororte aufgenommen werden. Damit ist es möglich, in der anschließenden Analyse der Daten alle beliebigen Schnitte, Projektionen und Berechnungen durchzuführen.

Von den Detektoren werden jeweils fünf analoge Signale ausgegeben, nämlich das MCP-Signal, das als Zeitsignal verwendet wird, und die vier Anoden-Signale. Von den insgesamt vier Anoden-Signalen werden nur zwei benötigt, und zwar für jede Ebene eins. Sind aber pro Ebene zwei Signale vorhanden, so kann eine Bedingung auf die Summe der Laufzeiten gesetzt werden.

Bevor die Signale mit einem Time-to-Digital-Converter<sup>13</sup> (TDC) weiterverarbeitet werden können, müssen die Signale noch verstärkt werden. Nach der Verstärkung wandelt man die Signale in einem Constant-Fraktion-Discriminator in genormte NIM-Signale um. Diese Signale werden nun in den TDC geleitet. Der TDC nimmt jeden einzelnen Wert und speichert ihn in einem Zwischenspeicher. Die Zeitauflösung des verwendeten TDCs beträgt 0,5 ns pro Kanal.

Die über den Computer auszulesenden Module nehmen nicht die gesamte Zeit über Daten auf, sondern brauchen ein Trigger-Signal, ein Startsignal, in dem sie für ein gewisses Zeitintervall bereit sind, Daten aufzunehmen. Nach Beendigung des Zeitintervalls werden die Orts- und Zeitinformationen konvertiert und in ein Zwischenspeichermodule übergeben, bis der Computer diese Daten anfordert. Da der Vorgang des Konvertierens und des Auslesens der Module Zeit kostet, wird die Elektronik so verschaltet, daß man möglichst wenig Untergrundereignisse mitspeichert.

Bei der hier durchgeführten Messung wurde der Common-Stop<sup>14</sup> mittels einer Koinzidenz-Schaltung des eintreffenden Rückstoßions mit dem Signal des Synchrotrons erzeugt (Abbildung 3.19).

---

<sup>13</sup>Lecroy TDC 3377

<sup>14</sup>Der Common-Stop ist das Signal, daß die Aufnahme pro Event beendet.

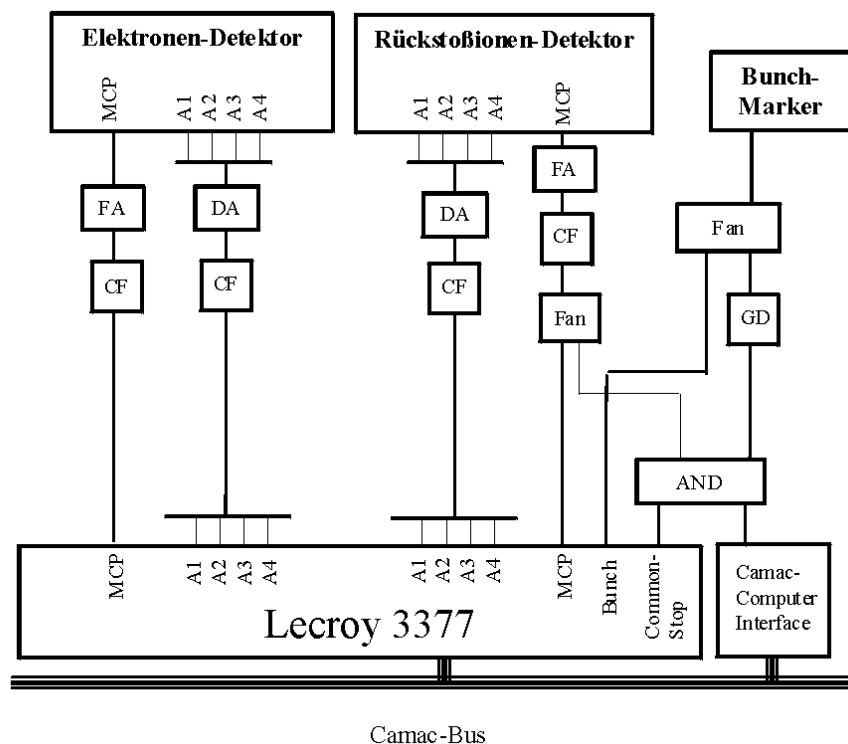


Abbildung 3.19: Schaltplan; FA = Vorverstärker (Fast Amplifier), DA = Differenz-Verstärker (Differential Amplifier), CF = Constant Fraction, GD = Gate and Delay.

Der zeitliche Ablauf innerhalb der Koinzidenz-Schaltung geschieht folgendermaßen: Wird ein Rückstoßion auf dem Detektor nachgewiesen, so wird ein Zeitfenster geöffnet. Das Bunchmarker-Signal wird so weit verzögert, daß es in das Zeitfenster fällt. Alle weiteren Signale vom Elektronendetektor müssen in diesem Zeitfenster liegen.

Alle Daten wurden mit dem Datenaufnahmesystem „Kmacs“ gespeichert, mit einer Fortran-Routine ausgewertet und mit dem Datenanalyseprogramm Physics Analysis Workstation [102] (PAW) dargestellt.



# Kapitel 4

## Datenanalyse

### 4.1 Messung

Die Photodoppelionisationsmessungen wurden mit linear sowie links und rechts zirkular polarisiertem Licht bei 100 eV und 450 eV über der Schwelle durchgeführt. Dies umfaßt drei mal zwei Messungen. Die Meßzeit für die sechs Messungen betrug insgesamt 120 Stunden.

Die Daten wurden in Form von Listmode-Daten gespeichert. Diese „Roh“-Daten beinhalten die Relativzeiten zwischen dem Bunchmarker-Signal, den Micro-Channel-Plate-Signalen und den insgesamt acht Anodensignalen der beiden Detektoren. Diese Relativzeiten müssen für die Berechnung der dreidimensionalen Impulsvektoren für das gemessene Elektron und das doppelt geladene Heliumion in die Flugzeiten der beiden Teilchen relativ zum Ionisationszeitpunkt und in den jeweiligen Auftreffort auf dem Detektor umgerechnet werden.

Dazu müssen mittels Kalibration die Proportionalitätskonstanten und Nullpunkte in den Zuordnungsfunktionen zwischen den gemessenen Relativzeiten und den zu ermittelnden Impulsen gefunden werden.

Für alle sechs Messungen wurde die gleiche Apparatur mit gleichen Spektrometer- und Detektoreinstellungen benutzt. Nach Abschluß aller Messungen stellte sich heraus, daß bei der letzten der sechs Messungen das Spulenpaar, das für die Erdmagnetfeldkompensation in vertikaler Richtung zuständig war, ausgefallen war. Da die Kompensationsspulen die Trajektorien der Teilchen, speziell der Elektronen, wesentlich beeinflussen, ändern sich die Auftrefforte der Elektronen und Ionen auf den beiden Detektoren. Deshalb mußten zwei unterschiedliche Kalibrationen durchgeführt werden.

Um für die Photodoppelionisation allen Teilchen den entsprechenden Impuls zuordnen zu können, müssen folgende Größen bekannt sein:

- Die Umrechnungsfaktoren der Laufzeiten (ns) auf den Anodendrähten der Detektoren in Ortseinheiten (mm)

Die Umrechnungsfaktoren von ns in mm sind aus früheren Messungen bekannt, bei denen Delay-Line-Anoden zum Einsatz kamen. Da die beiden Wicklungen unterschiedlich lang sind<sup>1</sup>, unterscheiden sich die Umrechnungsfaktoren entsprechend der Längendifferenz der beiden Drahtwicklungen.

Noch unbekannte Größen in den Gleichungen 3.11 bis 3.16 und in Gleichung 3.19 sind:

- die Stärke des elektrischen und magnetischen Feldes
- die Flugzeiten  $t_{0,e}$  und  $t_{0,He^{2+}}$  und die Auftrefforte der Elektronen  $(x_{0,e}; y_{0,e})$  und der Ionen  $(x_{0,He^{2+}}; y_{0,He^{2+}})$ , die mit einem Startimpuls von Null aus der Reaktion hervorgehen
- die Faktoren  $c_{x,He^{2+}}$  sowie  $c_{y,He^{2+}}$  und  $c_{z,He^{2+}}$
- und die absoluten Flugzeiten der Elektronen

Um diese Größen bestimmen zu können, müssen die Energien und die Impulsbeträge der detektierten Teilchen bekannt sein. Dies ist bei der Photodoppelionisation nicht der Fall, da sie einen Drei-Körper-Prozeß darstellt, bei dem die Überschußenergie auf beide Elektronen aufgeteilt wird und deshalb nicht auf die Impulse geschlossen werden kann.

Deshalb wurde für die Kalibration die Photoeinfachionisation von Helium verwendet, da bei dieser Reaktion die Energie und die Impulsbeträge bekannt sind: Die Energie des Elektrons berechnet sich dabei zu  $E_e = E_\gamma - E_{Anr} - 24,6 \text{ eV}$ , die Energie des Rückstoßions ist wegen seiner hohen Masse vernachlässigbar. Die Anregungsenergie berechnet sich zu

$$E_{Anr} = 54,4 \text{ eV} - \frac{54,4}{n^2} \text{ eV} \quad (4.1)$$

wobei  $n$  die jeweilige Schale ist<sup>2</sup>, in der sich das verbleibende Elektron befindet. Die Energie des Elektrons kann in den Impulsbetrag umgerechnet werden.

Für die Kalibrationsmessungen wurden Photon-Energien von  $E_\gamma = 74 \text{ eV}$  bis  $100 \text{ eV}$  verwendet. Da das Photon bei diesen Energien so gut wie keinen<sup>3</sup> Impuls trägt, sind die Impulsbeträge des Elektrons und des einfach geladenen Heliumions gleich groß. Mit diesem Wissen ist es möglich, die noch gesuchten, unbekannten Größen zu bestimmen.

---

<sup>1</sup>Bei der Delay-Line-Anode gibt es eine obere und eine untere Wicklung; die obere ist geringfügig länger.

<sup>2</sup>Damit ergeben sich die Anregungsenergien für die Schalen  $n = 1$  bis  $n = 4$  zu:  $E_{Anr}(n = 1) = 0 \text{ eV}$ ;  $E_{Anr}(n = 2) = 40,795 \text{ eV}$ ;  $E_{Anr}(n = 3) = 48,348 \text{ eV}$ ;  $E_{Anr}(n = 4) = 50,9925 \text{ eV}$

<sup>3</sup>Der lineare Impuls des Photons berechnet sich bei einer Energie von  $E_\gamma = 74 \text{ eV}$  zu  $p_\gamma = 0,02 \text{ a.u.}$ , und bei einer Energie von  $E_\gamma = 100 \text{ eV}$  zu  $p_\gamma = 0,027 \text{ a.u.}$

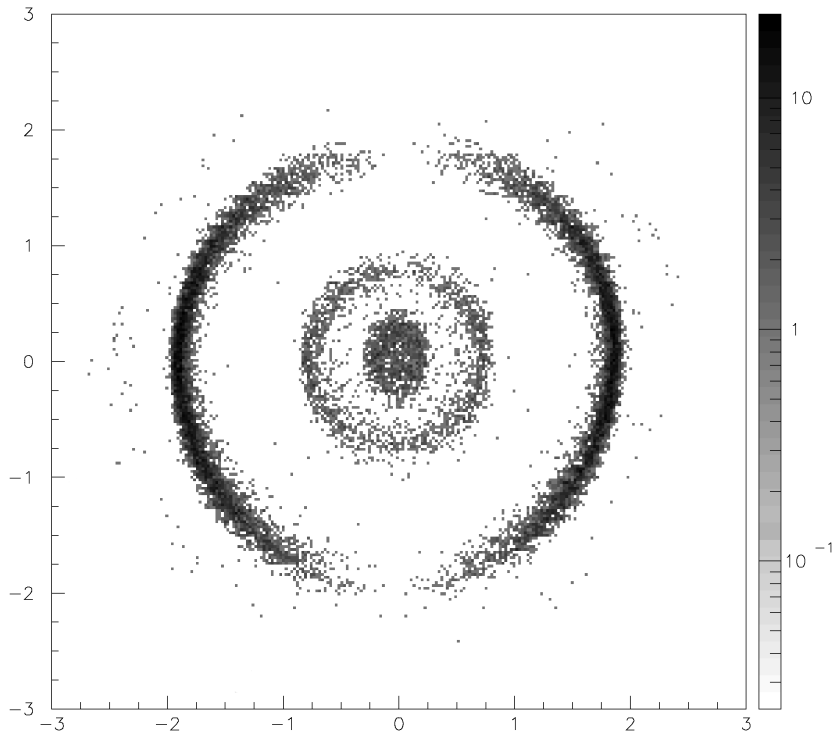


Abbildung 4.1: Schnitt durch die Impulsverteilung des Heliumions. Zwei Ringe, die zu den angeregten Zuständen gehören, sind beobachtbar. Der äußerste Ring gehört zu der Reaktion, bei der das gebundene Elektron nicht angeregt ist.

Es wurde eine Kalibrationsserie mit linear polarisiertem Licht durchgeführt; die Photon-Energien lagen dabei zwischen  $E_\gamma = 70$  eV und 100 eV. Da während der „Haupt“-Messung die Kompensationsspulen ausfielen, wurden für jede Photon-Energie zwei Kalibrationsmessungen durchgeführt, das eine Mal *mit*, das andere Mal *ohne* Kompensationsspulen.

## 4.2 Kalibrierung

### 4.2.1 Kalibrierung des Rückstoßionen-Spektrometers anhand der einfach geladenen Heliumionen

Das elektrische Feld am Wechselwirkungsort und die Faktoren  $c_{x,He^{2+}}$ ,  $c_{y,He^{2+}}$  und  $c_{z,He^{2+}}$  erhält man aus den Kalibrationsmessungen, bei denen die Impulsbeträge der einfach geladenen Heliumionen bekannt sind:

Da das im Atom verbleibende Elektron bei der Photoeinfachionisation verschiedene Anregungsenergien besitzen kann, können die emittierten Elektronen verschiedene *dis-*

krete Energie und Impulsbeträge tragen. Somit kann *auch* das einfach geladene Heliumion verschiedene diskrete Impulsbeträge annehmen.

Diskrete Impulsbeträge stellen Kugelschalen im Impulsraum zentrisch um den Ursprung ( $p_{x,He^{1+}} = p_{y,He^{1+}} = p_{z,He^{1+}} = 0$ ) dar (siehe Abbildung 4.1).

Bei der Kalibration wird zunächst der Nullpunkt ( $p_{x,He^{1+}} = p_{y,He^{1+}} = p_{z,He^{1+}} = 0$ ) bestimmt, der bei allen Impulskugeln des einfach geladenen Heliumions identisch ist. Die Werte für  $x_{0,He^{1+}}$  und  $y_{0,He^{1+}}$  hängen vom Erdmagnetfeld ab; daher erhält man für  $x_{0,He^{1+}}$  und  $y_{0,He^{1+}}$  in Abhängigkeit von der Erdmagnetfeldkompensation unterschiedliche Werte. Der Wert für  $t_{0,He^{1+}}$  ist unabhängig vom Magnetfeld und ändert sich nicht.

Ist dieser Punkt gefunden, so müssen die Kalibrationsfaktoren  $c_{x,He^{1+}}$ ,  $c_{y,He^{1+}}$  und  $c_{z,He^{1+}}$  ermittelt werden. Da die Kalibrationsfaktoren für die Heliumionen nur vom elektrischen Feld abhängen, gelten die ermittelten Faktoren für alle Messungen, sowohl für die *mit* als auch *ohne* Magnetfeldkompensation.

Aus dem Kalibrationsfaktor  $c_{z,He^{1+}}$  läßt sich dann mit Gleichung 3.13 das elektrische Feld zu  $\mathcal{E} = 7,61 \text{ V/cm}$  bestimmen.

Sind die Umrechnungsfaktoren  $c_{x,He^{1+}}$ ,  $c_{y,He^{1+}}$  und  $c_{z,He^{1+}}$  für die Photoeinfachionisation ermittelt, so können diese in die entsprechenden Umrechnungsfaktoren  $c_{x,He^{2+}}$ ,  $c_{y,He^{2+}}$  und  $c_{z,He^{2+}}$  für die Photodoppelionisation mittels folgender Beziehung überführt werden:

$$c_{x,He^{2+}} = \sqrt{2} \cdot c_{x,He^{1+}} \quad (4.2)$$

$$c_{y,He^{2+}} = \sqrt{2} \cdot c_{y,He^{1+}} \quad (4.3)$$

$$c_{z,He^{2+}} = 2 \cdot c_{z,He^{1+}} \quad (4.4)$$

Die Nullpunkte ( $x_{0,He^{2+}}; y_{0,He^{2+}}; t_{0,He^{2+}}$ ) im Ort als auch in der Zeit sind ungleich denjenigen der Photoeinfachionisation und werden anhand der Photodoppelionisation bestimmt.

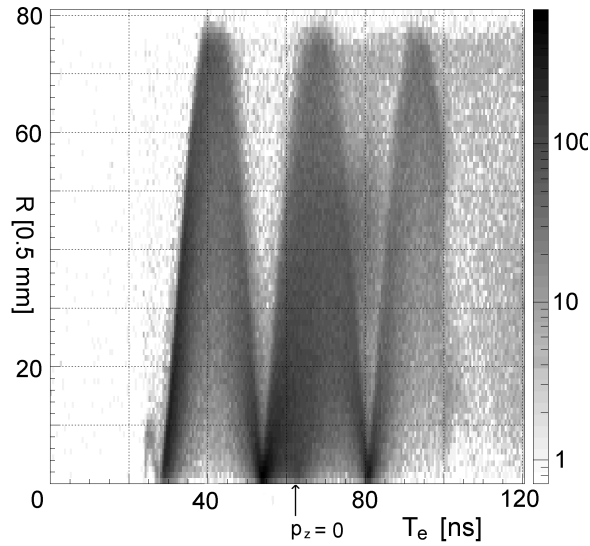
## 4.2.2 Kalibrierung des Elektronen-Spektrometers

Die Stärke des magnetischen Feldes und die absolute<sup>4</sup> Flugzeit der Elektronen erhält man aus dem dem Wiggle-Spektrum (vergleiche hierzu Kapitel 3.5.3).

Für die Berechnung der beiden Impulskomponenten transversal zur Flugrichtung muß das magnetische Feld bekannt sein. Seine Bestimmung erfolgt über die Gyrationperiode  $t_{Gyr}$ .

---

<sup>4</sup>Die Elektronen-Flugzeiten sind mit dem Bunchmarker-Signal von der Synchrotronstrahlenquelle korreliert, das wiederum mit den Lichtpulsen eine zeitliche Beziehung aufweist. Zwischen Bunchmarker-Signal und dem Lichtpuls gibt es unter anderem aufgrund des Vorhandenseins von Kabeldelay einen zeitlichen Versatz.



Abbildungung 4.2: Abstand  $R$  gegen die Flugzeit in ns. Aus dem Abstand der Knoten läßt sich ein Magnetfeld von 13 Gauss ermitteln. Die Gyrationperiode hängt allein vom Magnetfeld ab und ist unabhängig vom elektrischen Feld. Der Pfeil markiert die Flugzeit eines Elektrons, das mit dem Impuls  $p_z = 0$  startet.

$$B = \frac{2\pi \cdot m}{q \cdot t_{Gyr}} \quad (4.5)$$

Abbildungung 4.2 zeigt den Abstand  $R$  vom Auftreffort eines Elektrons zu  $(x_{0,e}; y_{0,e})$  gegen die Flugzeit in ns. Die Zeitdifferenz zwischen den Knoten beträgt 26,6 ns. Das magnetische Feld berechnet sich nach Gleichung 4.5 zu  $B = 13,4$  Gauß.

Anhand dieses Spektrums läßt sich auch die absolute Flugzeit  $t_e$  der Elektronen ermitteln. Der Zeitnullpunkt ist identisch mit dem Knoten der nullten Periode. In Abbildung 4.2 sind die Knoten der ersten bis dritten Periode dargestellt; die nullte Periode liegt im Koordinatenursprung dieses Diagramms.

Ist die absolute Flugzeit bekannt, so kann mit einem numerischen Lösungsverfahren aus der Flugzeit die Impulskomponente in Flugzeitrichtung bestimmt werden.

Sind  $(x_{0,e}; y_{0,e})$  bestimmt, kann mit den beiden Gleichungen 3.15 und 3.16 auf die Impulskomponenten  $p_{x,e}$  und  $p_{y,e}$  geschlossen werden.

### 4.2.3 Überprüfung der Kalibrierung auf Impulserhaltung

Wurden beide Spektrometer kalibriert, so ist ein erster Check die Impulserhaltung. Für jedes einzelne Event der Einfachionisation muß die Summe der einzelnen Komponenten Null ergeben. Trägt man die jeweiligen Impulskomponenten von Elektron und dem einfach geladenen Heliumion gegeneinander auf, so muß sich bei richtiger Kalibrierung eine Diagonale mit einer Steigung von  $m = -1$  ergeben, die durch den Koordinatenursprung geht.

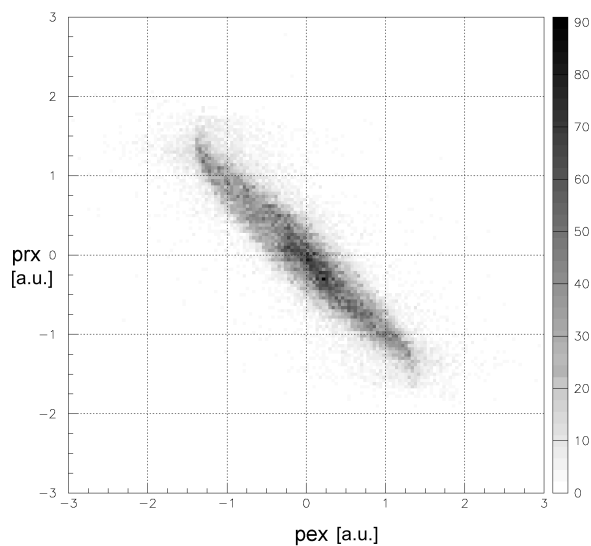


Abbildung 4.3: Einfachionisation von Helium mit einer Photon-Energie von 74 eV (Kalibrationsmessung). Der  $x$ -Impuls des Ions ( $pr_x$ ) ist gegen den  $x$ -Impuls des Elektrons ( $p_{ex}$ ) aufgetragen. Die Breite der Verteilung beträgt  $(0,3 \pm 0,014)$  a.u.

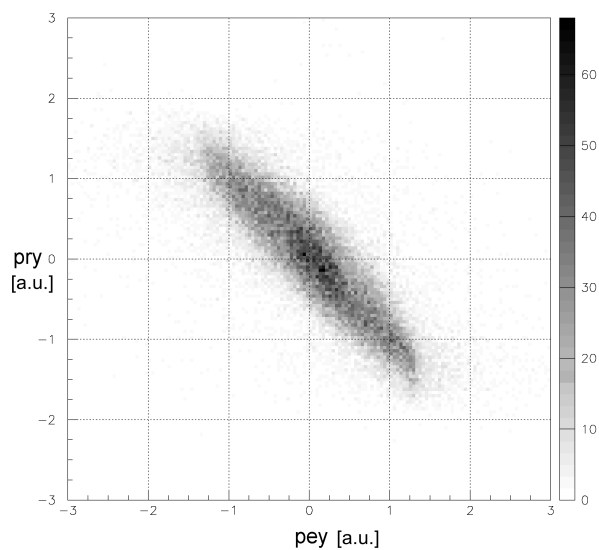


Abbildung 4.4: Einfachionisation von Helium mit einer Photon-Energie von 74 eV (Kalibrationsmessung). Der  $y$ -Impuls des Ions ( $pr_y$ ) ist gegen den  $y$ -Impuls des Elektrons ( $p_{ey}$ ) aufgetragen. Die Breite der Verteilung beträgt  $(0,4 \pm 0,017)$  a.u.

In Abbildung 4.3 bis 4.5 sind die jeweiligen Impulskomponenten gegeneinander aufgetragen. Die Impulserhaltung ist für jede Komponente erfüllt.

Die Breite der Diagonale gibt die Impulsauflösung in der jeweiligen Richtung an.

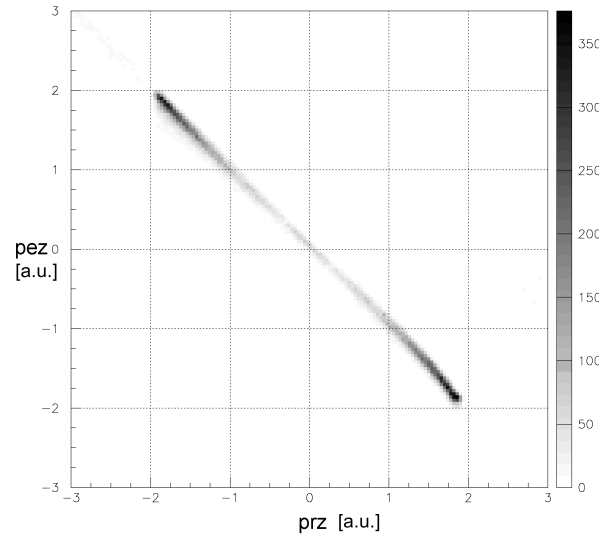


Abbildung 4.5: Einfachionisation von Helium mit einer Photon-Energie von 74 eV (Kalibrationsmessung). Der  $z$ -Impuls des Elektrons ( $pez$ ) ist gegen den  $z$ -Impuls des Heliumions ( $prz$ ) aufgetragen. Die Breite der Verteilung beträgt  $(0,09 \pm 0,001)$  a.u.

### Impulsauflösung der Ionen und Elektronen

Aus der Geometrie des Jetsystems und aus der Meßunschärfe in der Zeit und dem Ort läßt sich relativ genau die Impulsunschärfe des Heliumkerns bestimmen. Aus der Geometrie des Jetsystems erhält man eine Impulsunschärfe von 0,3 a.u. in longitudinaler und 0,17 a.u. in transversaler Richtung vom Jet (vergleich Kapitel 3.4).

Da der Durchmesser des Photonen-Strahls wesentlich kleiner als der des Jets ist, ist die transversale Impulsunschärfe in  $z$ -Richtung kleiner als in  $x$ -Richtung. Rechnet man die Impulsunschärfe der kalten Ionen zu denen der Meßungenauigkeit in der Zeit und im Ort ein, so erhält man folgende Impulsunschärfen für die doppelt geladenen Heliumkerne in  $z$ : 0,08 a.u.; in  $x$ -Richtung beträgt die Impulsunschärfe 0,2 a.u. und in  $y$ -Richtung 0,3 a.u..

Ähnlich lassen sich auch die Impulsunschärfen der Elektronen abschätzen: Auch hier geht die Meßungenauigkeit in der Zeit und im Ort ein. Die maximale Impulsunschärfe beträgt 0,05 a.u. in  $z$ -Richtung und 0,2 a.u. in  $x$ - und  $y$ -Richtung.

## 4.3 Überprüfung der Energie-Erhaltung

Für die Kalibrationsmessungen, bei der die Einfachionisation von Helium bei unterschiedlichen Photon-Energien gemessen wurde, konnte die Impulserhaltung überprüft werden, da man alle sechs Impulskomponenten bestimmt hat. Diese Überprüfung auf Impulserhaltung ist bei der Photodoppelionisation nicht mehr möglich, da man von den neun Impulskomponenten nur sechs mißt. Da man für die vollständige Information des Endzustandes

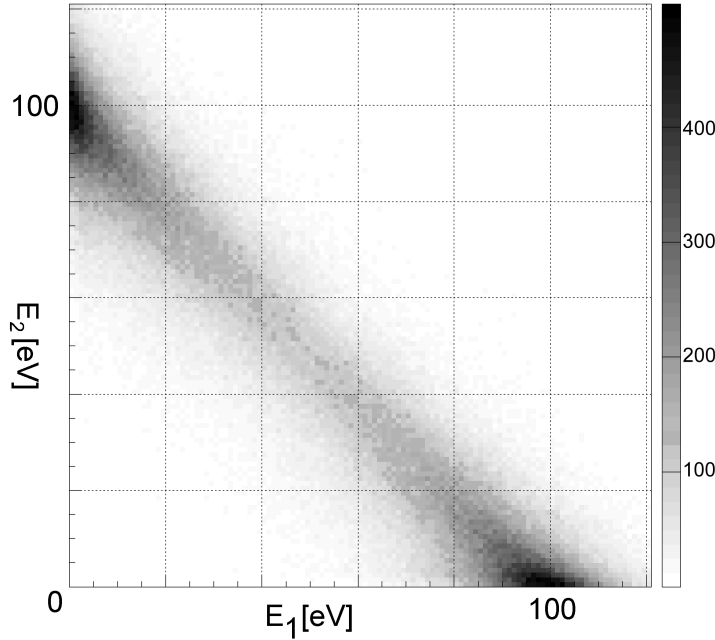


Abbildung 4.6: Energie von Elektron  $e_1$  gegen die Energie des komplementären Elektrons  $e_2$  aufgetragen.

lediglich fünf Impulskomponenten benötigt, heißt das, daß man ein einfach überbestimmtes Gleichungssystem vorliegen hat. Damit ist es möglich, die aufgenommenen Daten auf Energie-Erhaltung zu überprüfen.

Die Summenenergie von beiden Elektronen gibt dabei Auskunft über die Meßgenauigkeit. In Abbildung 4.6 ist die Energie eines Elektrons gegen die des komplementären Elektrons aufgetragen. Alle realen Koinzidenz-Events sind auf der Diagonalen, die durch  $E_1 = E_\gamma - 79 \text{ eV} - E_2$  gegeben ist, zu finden. Die Breite dieser Diagonalen zeigt die gesamte Auflösung des Spektrometers; sie beträgt 10 eV.

#### 4.4 Normierung der experimentellen Daten auf präzise gemessene totale Wirkungsquerschnitte

Für einen absoluten Vergleich der experimentellen Daten mit theoretischen Rechnungen ist eine Normierung der gemessenen Daten notwendig. Eine Bestimmung des Wirkungsquerschnittes für die Photodoppelionisation von Helium 100 eV und 450 eV über der Doppelionisationsschwelle von 79 eV ist jedoch ohne genaue Kenntnis des Strahlstroms, der Teilchendichte im Jet und der Teilchen-Nachweiseffizienz der beiden verwendeten Detektoren nicht möglich. Möglich ist allerdings die Normierung der 100 eV Daten auf die von Samson *et al.* [83, 15] für totale Wirkungsquerschnitte gemessenen Werte, da das im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Experiment den gesamten Phasenraum mit konstanter Effizienz nachweist. Die totale Anzahl  $N_{tot}$  von Koinzidenz-Events für



$E_1 \leq 50$  eV ist equivalent zum totalen Wirkungsquerschnitt der Doppelionisation von 2,8 kbarn.

$$\sigma^{++} = N_{Norm} \cdot N(\Delta\Omega_1, \Delta\Omega_2, \Delta E_1)$$

$$5DCS = \frac{d^3\sigma^{++}}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1} = \frac{N_{Norm} \cdot N_{tot}(E_1 \leq 50\text{eV})}{\Delta\Omega_1 \Delta\Omega_2 \Delta E_1}$$

Hierbei ist  $N(\Delta\Omega_1, \Delta\Omega_2, \Delta E_1)$  die Anzahl der Ereignisse in den beiden entsprechenden Raumwinkeln und im Energie-Intervall.

Um Literaturdaten für 450 eV über der Doppelionisationsschwelle heranziehen zu können, hätten Elektronen mit bis zu  $E = E_{exc}/2 = 225$  eV gemessen werden müssen; deshalb ist hier nur eine Normierung der Daten auf die berechneten einfach differentiellen Wirkungsquerschnitte mittels der convergent-close-coupling (CCC)-Theorie möglich. Experimente haben gezeigt, dass man mit einer CCC-Rechnung die absoluten Wirkungsquerschnitte quantitativ gut vorhersagen kann. Die Anzahl der Koinzidenzen mit  $E_1 \leq 60$  eV ist äquivalent zur Integration des einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnittes von 0 eV bis 60 eV:  $\int_{0\text{eV}}^{60\text{eV}} (d\sigma^{++}/dE_1) dE_1$ .

## 4.5 Extraktion der geraden und ungeraden Amplitude und deren Relativphase aus einem COLTRIMS-Datensatz

Wie in Kapitel 2.5.1 beschrieben, kann für gleiche Energieaufteilung leicht das Quadrat der geraden Amplitude extrahiert werden, da hier die ungerade Amplitude verschwindet. Somit ist der 5DCS allein durch das Quadrat der geraden Amplitude und den geometrischen Faktor bestimmt.

$$5DCS \Big|_{E_1=E_2} = |a_g|^2 (\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2)^2 \quad (4.6)$$

Wie man  $E_1 = E_2$  setzt, um das Quadrat der geraden Amplitude zu erhalten, so kann man mit einer Bedingung auf die Summe, bzw. die Differenz von  $\cos \vartheta_1$  und  $\cos \vartheta_2$  das Quadrat der geraden, bzw. der ungeraden Amplitude für den Fall ungleicher Energieaufteilung erhalten: Für die Extraktion der Quadrate der geraden Amplitude für verschiedene Energieaufteilungen setzt man  $(\cos \vartheta_1 - \cos \vartheta_2) = 0$ .

$$5DCS \Big|_{\cos \vartheta_1 = \cos \vartheta_2} = |a_g|^2 (\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2)^2 \quad (4.7)$$

Für das Quadrat der ungeraden Amplitude setzt man analog die Bedingung  $(\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2) = 0$ .

$$5\text{DCS} \Big|_{\cos \vartheta_1 = -\cos \vartheta_2} = |a_u|^2 (\cos \vartheta_1 - \cos \vartheta_2)^2 \quad (4.8)$$

Diese Methode führt in der Regel aber nicht zum Erfolg, da man in beiden Fällen nur einen geringen Statistikumfang zur Verfügung hat.

Für einen COLTRIMS-Datensatz wurde deshalb von Bertold Krässig eine Methode für die Extraktion der geraden und ungeraden Amplitude entwickelt, die es erlaubt, alle gewonnenen Daten, die im vollen Raumwinkel gesammelt wurden, für die Auswertung zu verwenden [103]. Für die Herleitung dieser Methode werden keine Annahmen gemacht, außer der Gültigkeit der Dipolnäherung und der Verwendung von linear polarisiertem Licht.

Gleichung 2.7 enthält die dynamischen Größen  $a_g$  und  $a_u$  (als Funktion der Energieaufteilung und des Relativwinkels  $\vartheta_{12}$ ) sowie geometrische Größen, die keine Information enthalten. Das Ziel ist, die dynamischen Größen unter Verwendung des gesamten COLTRIMS-Datensatzes herauszupräparieren. Anders ausgedrückt: Man integriert bei dieser Methode bis auf den Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  und der Energieaufteilung über alle Parameter.

Für solch eine Integration ist es sinnvoll, die vier Winkel der zwei Elektron-Impulse ( $\vartheta_1, \vartheta_2, \varphi_1, \varphi_2$ ) in die drei Euler-Winkel  $\alpha, \beta, \gamma$  zu transformieren.

Die Impulse der beiden Elektronen und der Kern beschreiben ein Dreieck mit  $\vartheta_{12}$  als Öffnungswinkel, die drei Eulerwinkel  $\alpha, \beta, \gamma$  bestimmen die Orientierung dieses Dreiecks im Raum.

Integriert man nun über  $\alpha$  und  $\beta$ , so erhält man:

$$\frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} = \frac{1}{\pi} \left[ A \cos^2 \gamma + B \sin^2 \gamma + (C - D) \frac{\sin 2\gamma}{2} \right] \quad (4.9)$$

mit

$$A = \frac{16\pi^2}{3} |a_g|^2 (1 + \cos \vartheta_{12}) \quad (4.10)$$

$$B = \frac{16\pi^2}{3} |a_u|^2 (1 - \cos \vartheta_{12}) \quad (4.11)$$

$$C - D = \frac{32\pi^2}{3} |a_g| |a_u| \cos \Phi \sin \vartheta_{12} \quad (4.12)$$

Die Bedingungen auf  $\cos \vartheta_1$  und  $\cos \vartheta_2$  werden zu Bedingungen auf  $\gamma$ . Dieser Winkel

wird wie folgt definiert:

$$\gamma = \arctan \left( \frac{(\cos \vartheta_1 - \cos \vartheta_2) \cos \frac{\vartheta_{12}}{2}}{(\cos \vartheta_1 + \cos \vartheta_2) \sin \frac{\vartheta_{12}}{2}} \right) \quad (4.13)$$

Prinzipiell ist es möglich, die Winkel  $\gamma$  herauszusuchen, bei denen der Term  $a_g$  oder der mit  $a_u$  oder der mit dem Mischterm Null wird. Das ist bei  $\gamma = 0$ ,  $\gamma = \pm\pi/2$  und bei  $\gamma = \pm\pi/4$  der Fall. Das sind aber - wie bei den Gleichungen 4.7 und 4.8 - wieder nur singuläre Werte.

Eine andere Methode zur Extraktion der Amplituden besteht aus einer Integration von  $\gamma$  über spezielle Bereiche. In diesen Bereichen ( $\mathcal{A}, \mathcal{B}, \mathcal{C}, \mathcal{D}$ ) überwiegt dann entweder  $a_g$  oder  $a_u$ . Wenn man D von C subtrahiert, erhält man zweimal den Mischterm.

Die Mischung von  $a_g$  und  $a_u$  in den Bereichen  $\mathcal{A}$  und  $\mathcal{B}$  ist durch die Gleichungen 4.14 und 4.15 gegeben. Der Mischungsparameter ist analytisch bestimmbar und hängt von der Größe des  $\gamma$ -Integrationsbereiches ab.

$$\mathcal{A} = \int_{\mathcal{A}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma = \frac{1}{2} \left( \left(1 + \frac{2}{\pi}\right) A + \left(1 - \frac{2}{\pi}\right) B \right) \quad (4.14)$$

$$\mathcal{B} = \int_{\mathcal{B}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma = \frac{1}{2} \left( \left(1 + \frac{2}{\pi}\right) B + \left(1 - \frac{2}{\pi}\right) A \right) \quad (4.15)$$

$$\mathcal{C} - \mathcal{D} = \int_{\mathcal{C}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma - \int_{\mathcal{D}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma = \frac{2}{\pi} (C - D) \quad (4.16)$$

mit den Integrationsgrenzen

$$\begin{aligned} \mathcal{A} &= \left[-\frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{4}\right) & \mathcal{B} &= \left[-\frac{\pi}{2}, -\frac{\pi}{4}\right), \left[\frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{2}\right) \\ \mathcal{C} &= \left[0, \frac{\pi}{2}\right) & \mathcal{D} &= \left[-\frac{\pi}{2}, 0\right) \end{aligned}$$

Die Integrationen sind so gewählt, daß A + B und C + D eine Integration über den gesamten  $\pi$ -Bereich des  $\gamma$ -Winkels darstellt.

Die reinen Komponenten A und B lassen sich durch die Relationen

$$A = \frac{\pi + 2}{4} \mathcal{A} - \frac{\pi - 2}{4} \mathcal{B}; \quad B = \frac{\pi + 2}{4} \mathcal{B} - \frac{\pi - 2}{4} \mathcal{A} \quad (4.17)$$

ausdrücken. Gleichungen 4.10 und 4.11 lassen erkennen, daß die Statistik für  $a_g$  bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  und für  $a_u$  bei  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  immer schlechter ist als für die übrigen Zwischenwinkel.

Unter Berücksichtigung aller obigen Gleichungen lassen sich die Amplituden und die Relativphase folgendermaßen berechnen:

$$|a_g|^2 = \frac{3}{16\pi^2(1 + \cos \vartheta_{12})} \left( \frac{\pi + 2}{4} \int_{\mathcal{A}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma - \frac{\pi - 2}{4} \int_{\mathcal{B}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma \right) \quad (4.18)$$

$$|a_u|^2 = \frac{3}{16\pi^2(1 - \cos \vartheta_{12})} \left( \frac{\pi + 2}{4} \int_{\mathcal{B}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma - \frac{\pi - 2}{4} \int_{\mathcal{A}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma \right) \quad (4.19)$$

$$\cos \Phi = \frac{3}{64\pi |a_g| |a_u| \sin \vartheta_{12}} \left( \int_{\mathcal{C}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma - \int_{\mathcal{D}} \frac{d^3\sigma}{dEd \cos \vartheta_{12} d \cos \gamma} d\gamma \right) \quad (4.20)$$

mit den bekannten Integrationsgrenzen.

Erwähnt sei noch, daß diese Methode lediglich den Cosinus der Phase zu extrahieren erlaubt (Gleichung 4.20). Möchte man Information über die genaue Phase, also den Sinus und den Cosinus der Phase haben, läßt sich hierzu die Gleichung

$$\begin{aligned} \text{CD} &\equiv 5\text{DCS}_{\sigma^+} - 5\text{DCS}_{\sigma^-} \\ &= -4 \cdot \sin(\varphi_{12}) \text{Im}\{a_g a_u^*\} = -4 \cdot \sin(\varphi_{12}) |a_g| |a_u| \sin \Phi \end{aligned} \quad (4.21)$$

verwenden.

Beide Gleichungen, Gl. 4.20 und Gl. 4.21, werden bei den hier vorliegenden Daten hinzugezogen, um die exakte Phase zu bestimmen (siehe Kapitel 5.7 und 6.6).

# Kapitel 5

## Ergebnisse der Photodoppelionisation 100 eV über der Schwelle

Für eine Übersicht über die Ergebnisse werden die einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitte  $d\sigma/dE_1$ , die doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitte, der  $\beta$ -Parameter und die Impulsverteilung in den einzelnen Elektronen- sowie in Jacobi-Koordinaten gezeigt. Diese Vorgehensweise bietet die Möglichkeit zu prüfen, ob der Doppelionisationsprozess bei dieser Energie noch im Geltungsbereich der Wannier-Näherung liegt.

Danach werden die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte für linear und zirkular polarisiertes Licht betrachtet. Das letzte Unterkapitel beschäftigt sich mit der geraden und der ungeraden Amplitude sowie der Relativphase zwischen beiden.

### 5.1 Einfachdifferentielle Wirkungsquerschnitte und der $\beta$ -Parameter

Abbildung 5.1 (a) zeigt den einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium 100 eV über der Schwelle. Die Verteilung hat die Form einer Wanne mit einem Minimum bei gleicher Energieaufteilung: Die Wahrscheinlichkeit für eine asymmetrische Energieaufteilung zwischen beiden Elektronen ist höher, als wenn beide Elektronen die gleiche Energie haben. Der Vergleich mit entsprechenden Daten bei niedriger Energie [36, 35] zeigt eine mit steigender Photon-Energie zunehmend asymmetrische Energieaufteilung.

Abbildung 5.1 (b) zeigt den Anisotropie-Parameter. Sehr langsame Elektronen werden isotrop ( $\beta = 0$ ) emittiert, während Elektronen mit einer Energie von nahezu 100 eV einen Anisotropie-Parameter von etwa  $\beta = 1,3$  haben, also überwiegend entlang der Polarisationsachse emittiert werden. Vergleicht man diese Daten mit dem Verlauf des  $\beta$ -Parameters 20 eV [53] über der Schwelle, so läßt sich folgendes feststellen: Sowohl bei 20 eV als auch bei 100 eV werden die sehr langsamen Elektronen isotrop emittiert. Der  $\beta$ -Parameter für die schnellen Elektronen nimmt jedoch für die beiden Energien unter-

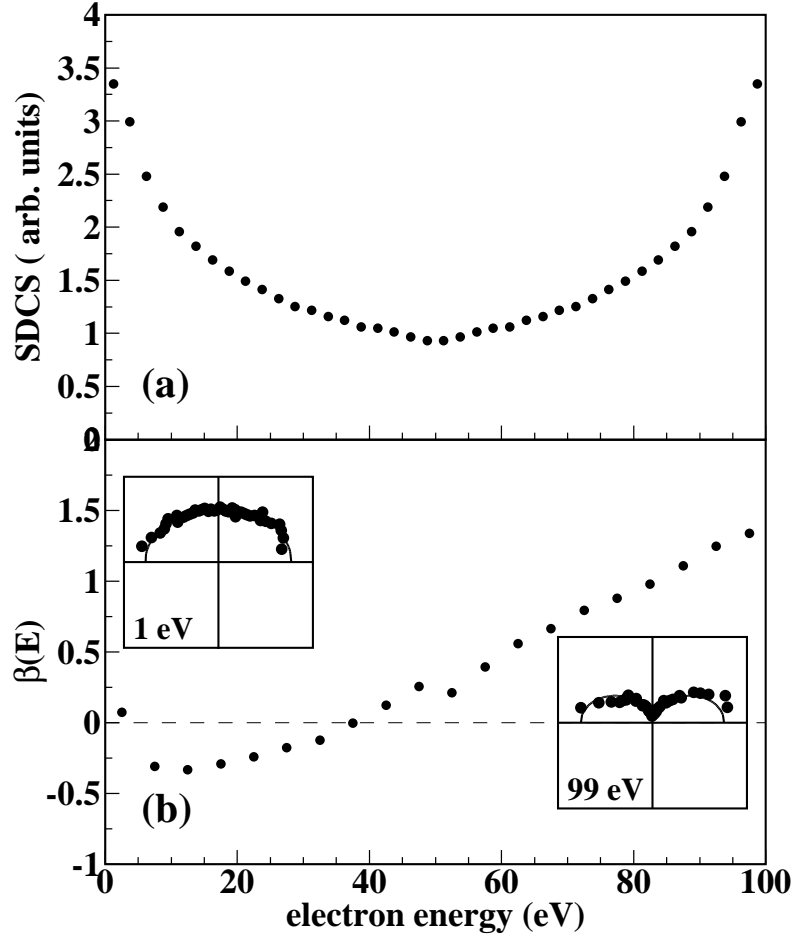


Abbildung 5.1: (a) Energieverteilung der Elektronen ( $d\sigma/dE_1$ ). (b) Der Anisotropie-Parameter  $\beta$  von einem der beiden Elektronen aus der Photodoppelionisation von Helium bei einer Photon-Energie von  $E_\gamma = 179$  eV. Die Einsätze zeigen den doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma^2/(d\Omega dE)$  für  $E_{1,2} = 1$  eV und 99 eV in Polarkoordinaten. Abbildung aus Knapp *et al.* [104].

schiedliche Werte an: während bei 100 eV ein Anisotropie-Parameter  $\beta = 1,3$  gemessen wurde, findet man bei 20 eV ein  $\beta \cong 0,2$  [53], also eine fast isotrope Verteilung der 20 eV Elektronen.

Abbildung 5.2 zeigt die Daten aus Abbildung 5.1 in Jacobi-Koordinaten (siehe Kapitel 2.3); Abbildung 5.2 (a) den einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitt. Man kann erkennen, daß  $E_+$  ein wenig kleiner als  $E_-$  ist<sup>1</sup>.

In Abbildung 5.2 (b) ist der  $\beta$ -Parameter in den Jacobi-Koordinaten  $\beta_+$  und  $\beta_-$  angegeben; es zeigt sich, daß der  $\beta_-$ -Parameter nicht mehr negativ ist, wie es nahe an der Schwelle der Fall ist [53]. Die durchgezogene und die gestrichelte Linie zeigen jeweils das Ergebnis einer 3C-Rechnung in Längen- und Geschwindigkeitsform.

<sup>1</sup>Zur Erinnerung:  $E_+ = p_+^2/4$  und  $E_- = p_-^2$  mit  $\vec{p}_+ = \vec{p}_1 + \vec{p}_2$  und  $\vec{p}_- = (\vec{p}_1 - \vec{p}_2)/2$ .

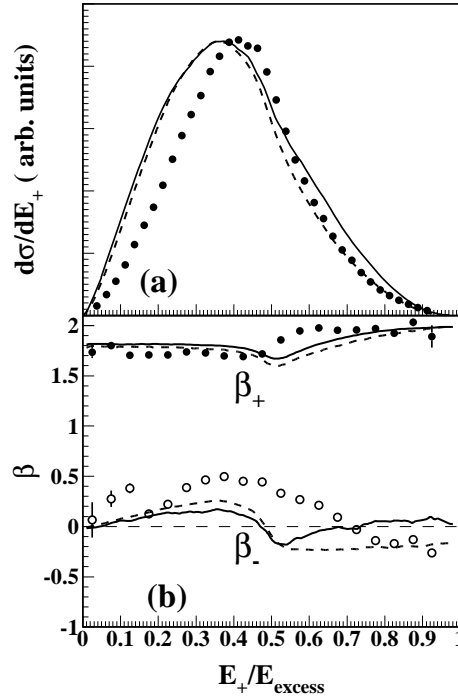


Abbildung 5.2: (a) Einfachdifferentieller Wirkungsquerschnitt  $SDCS = d\sigma/dE_+$  in Jacobi-Koordinaten, Energie in Einheiten von 100 eV über der Schwelle. (b)  $\beta_+$  und  $\beta_-$ -Parameter. Die Punkte zeigen die experimentellen Daten, die durchgezogene und die gestrichelte Linie stellen die Ergebnisse einer 3C-Rechnung in Längen- und Geschwindigkeitsform dar. Abbildung aus Knapp *et al.* [104].

## 5.2 Impulsverteilung in einzelnen Elektronen- und in Jacobi-Koordinaten

Abbildung 5.3 zeigt den Summenimpuls  $\vec{p}_+$ , den Elektronen-Impuls  $\vec{p}_1$  und den Relativimpuls  $\vec{p}_-$  für folgende Überschußenergien  $E_{\text{exc}} = 1$  eV [5], 20 eV [53] und 100 eV. Der Summenimpuls  $\vec{p}_+$  von beiden Elektronen, der wegen der Impulserhaltung gleichzeitig der entgegengesetzte Impuls des doppelt geladenen Heliumions ist, weist bei allen Energien in Richtung der Polarisationsachse. Dies ist damit zu erklären, daß - unabhängig von der Elektron-Elektron-Wechselwirkung - das Ion immer ein Teil des Dipols ist, an den das Photon ankoppelt. Die Verteilung reflektiert somit die Absorption des Photons.

Die Verteilung der Impulse der einzelnen Elektronen  $p_1$  scheint zunächst weitgehend unabhängig von der Photon-Energie zu sein. Jedoch fällt bei näherem Hinsehen folgendes auf: Während die Intensität bei 1 eV und bei 20 eV allein auf geringe Elektronenimpulse beschränkt ist, ist bei den 100 eV-Daten neben dem Maximum bei geringen Elektronenenergien auch ein Maximum bei sehr hohen Energien vorhanden. Dieses Maximum befindet sich entlang der Polarisationsrichtung und kann damit erklärt werden, daß die ganz schnellen Elektronen mit einer Energie von oder nahezu 100 eV einen  $\beta$ -Parameter von  $\beta = 1,3$  haben. Das heißt, sehr schnelle Elektronen werden vorwiegend entlang der Po-

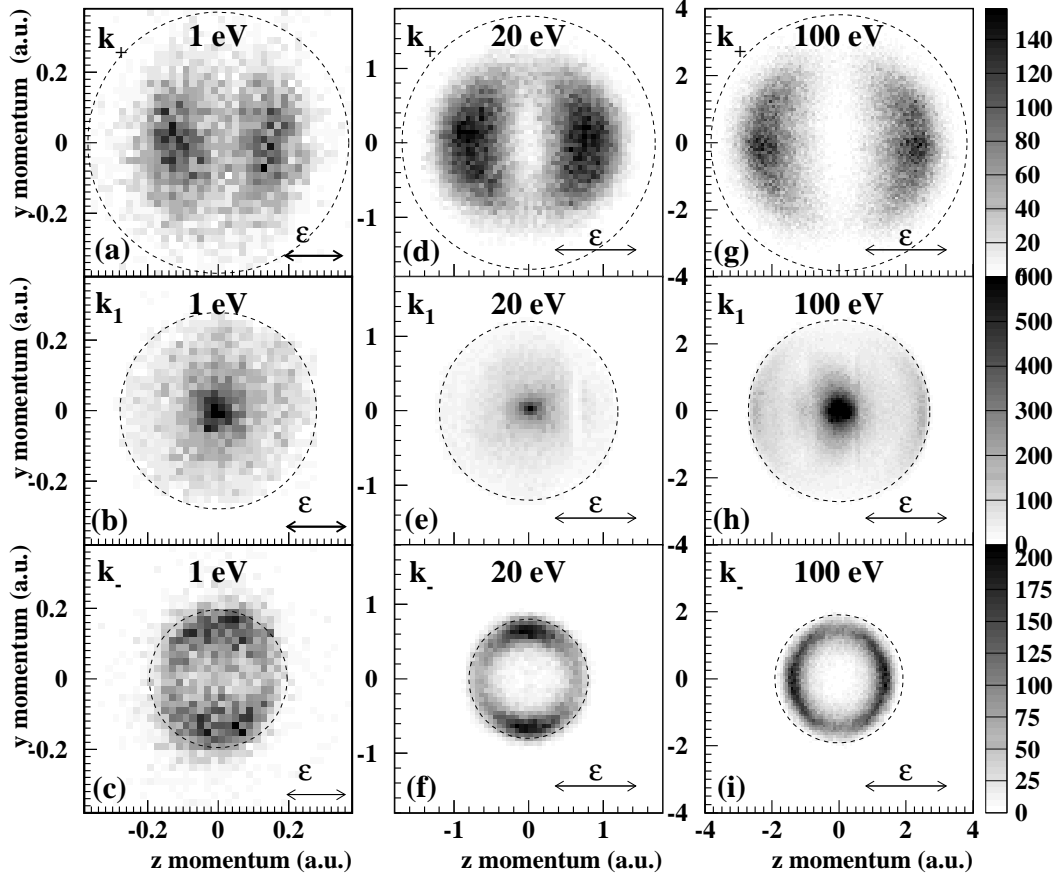


Abbildung 5.3: Projektionen der Impuls-Verteilung der Photodoppelionisation von Helium bei drei verschiedenen Energien über der Schwelle. Von links nach rechts: Datensatz für 1 eV, 20 eV und 100 eV über der Schwelle. Die Daten für 1 eV und 20 eV (linke und mittlere Spalte) stammen aus [5] und [53]. Die Messungen bei 100 eV über der Schwelle sind in der rechten Spalte dargestellt. Die  $z$ - und die  $y$ -Komponente des Impulses sind auf der horizontalen und der vertikalen Achse aufgetragen. Der Polarisationsvektor liegt entlang der horizontalen Achse und das Licht breitet sich senkrecht zu  $y$  und  $z$  aus. Die Abbildungen sind Projektionen auf die  $y - z$  Ebene mit  $-0,1 < p_x < 0,1$  a.u. für die 1 eV Daten,  $-0,2 < p_x < 0,2$  a.u. für die 20 eV Daten und für 100 eV über der Schwelle sind alle Events dargestellt, die die Bedingung  $-1 < p_x < 1$  a.u. erfüllen. (a), (d), (g) stellen den Summenimpuls  $p_+$  der beiden Elektronen für 1 eV, 20 eV und 100 eV über der Schwelle dar. Aufgrund der Impulserhaltung ist  $p_+$  die entgegengesetzte Impulsverteilung vom  $He^{2+}$  Ion. Die Diagramme (b), (e), (h) zeigen die Elektron-Impuls-Verteilung  $p_1$  (zu jedem langsamen Elektron gibt es ein entsprechendes schnelles Elektron) und (c), (f), (i) den Relativimpuls der beiden Elektronen  $\vec{p}_- = (p_1 - p_2)/2$ . Der Kreis markiert alle Events mit maximal möglichem Impuls bei der jeweiligen Photon-Energie. Abbildung aus Knapp *et al.* [104].



larisationsrichtung emittiert, während die Verteilung der langsamen Elektronen isotrop erfolgt, sie also einen Anisotropie-Parameter von  $\beta = 0$  haben, wie in Abbildung 5.1 zu erkennen ist.

Den größten Unterschied sieht man jedoch im Relativimpuls  $\vec{p}_-$  der beiden Elektronen: Während der Relativimpuls bei 1 eV und 20 eV senkrecht zum Polarisationsvektor vorzufinden ist, ist dieses Maximum bei 100 eV fast gänzlich verschwunden. Statt dessen findet man eine Ausrichtung entlang der Polarisationsachse.

Die Ausrichtung des Relativimpulses  $\vec{p}_-$  *senkrecht* zur Polarisationsachse bedeutet, daß Endzustände mit  $m = 1$  bevorzugt sind, siehe Kapitel 2.3. Der Endzustand nimmt bei Energien  $E_{exc} \leq 20$  eV [5, 53] somit einen molekularen  $\pi_u$ -Zustand ein; der Drei-Teilchen-Aufbruch bei einer Überschußenergie von 1 eV und 20 eV liegt demnach im Gültigkeitsbereich der Wannier-Näherung.

Bei 100 eV über der Schwelle tritt ein Relativimpuls *parallel* zum Polarisationsvektor auf; somit dominiert  $m = 0$ , der Endzustand kann durch einen molekularen  $\sigma_u$ -Zustand beschrieben werden. Hier ist die Neigungsregel  $\Delta((-1)^{t+m}) \cong 0$  nicht mehr gültig, wobei der Anfangszustand durch einen  $\sigma_g$  Zustand ( $m = 0$  und  $t = 0$ ) gegeben ist und wegen der negativen Parität  $t = 1$  ist.

Der zum Polarisationsvektor senkrechte Aufbruch des Elektronenpaares wird bei geringen Überschußenergien damit begründet, daß eine Oszillation des Helium-Kerns parallel zur Relativbewegung der beiden Elektronen zu einer Rekombination führen würde, was einer Photoeinfachionisation gleichkommt. Wie bei geringen Überschußenergien schwingt der Kern auch bei 100 eV parallel zum Polarisationsvektor. Gleichzeitig findet nun der Aufbruch der beiden Elektronen auch parallel zum Polarisationsvektor statt. Aufgrund der hohen Geschwindigkeitsdifferenzen der Elektronen zum doppelt geladenen Heliumion ist trotz der Parallelität des Summen- zum Differenzimpuls  $\vec{p}_+ \parallel \vec{p}_-$  die Wahrscheinlichkeit einer Rekombination vernachlässigbar gering.

### 5.3 Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts mit linear polarisiertem Licht

Abbildung 5.4 zeigt einen Überblick des Drei-Teilchen-Aufbruchs. Dargestellt ist die Impulsverteilung von Elektron  $e_2$  für eine feste Richtung von  $e_1$ , die durch einen Pfeil gekennzeichnet ist. Die Impulse beider Elektronen liegen senkrecht zur Lichtausbreitung. Der äußere Kreis kennzeichnet den Ort, an dem Elektron  $e_2$  die gesamte Überschußenergie von 100 eV besitzt, der innere Kreis zeigt den Ort, an dem beide Elektronen 50 eV haben.

Diese Illustration macht von den Vorteilen der COLTRIMS-Apparatur Gebrauch: Auf der einen Seite werden alle geladenen Teilchen im vollen Raumwinkel nachgewiesen, andererseits findet keine Vorauswahl der Energieaufteilungen während der Messung statt. Abbildung 5.4 zeigt für alle Energieaufteilungen die Winkelverteilung des komple-

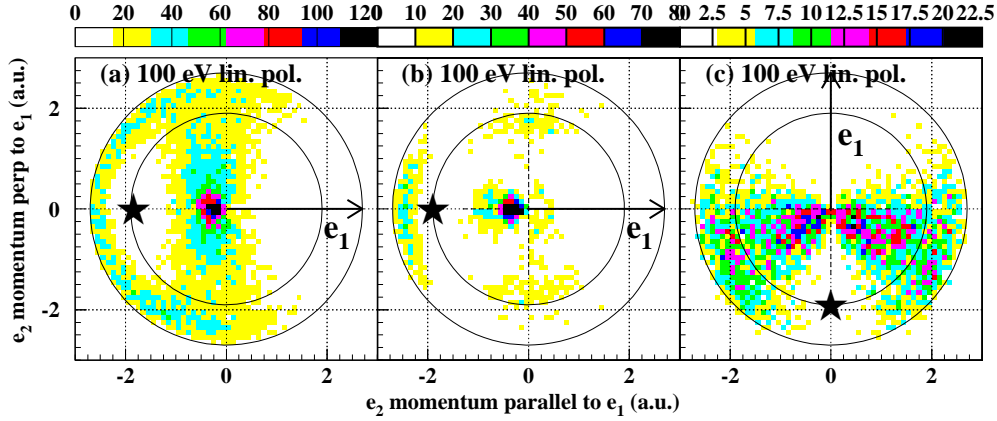


Abbildung 5.4: Impulsverteilung des zweiten Elektrons  $e_2$  mit Berücksichtigung des ersten Elektrons  $e_1$  für  $E_{exc} = 100$  eV über der Schwelle. Die beiden Elektronen befinden sich in einer Ebene senkrecht zur Strahl-ausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 30^\circ$ . Der Pfeil kennzeichnet die Richtung des ersten Elektrons  $e_1$ . Der äußere Kreis markiert den maximal möglichen Impuls. Der innere Kreis kennzeichnet den Ort aller Events mit gleicher Energieaufteilung. Abbildung (a) zeigt die Impulsverteilung, wobei über *alle Orientierungen der Polarisationsachse* integriert ist, während (b) und (c) eine Unterauswahl aller Events, die in (a) abgebildet sind, zeigt. Der Polarisationsvektor in (b) und (c) verläuft horizontal. (b) Elektron  $e_1$  ist innerhalb  $\vartheta_1 = \pm 30^\circ$  parallel zur Polarisationsachse; (c) Elektron  $e_1$  ist innerhalb  $\pm 5^\circ$  senkrecht zur Polarisationsachse ( $\vartheta_1 = 90^\circ \pm 5^\circ$ ). Der Stern markiert den Ort des Knotens bei  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  (Auswahlregel C). Dieser Knoten ist unabhängig von der Polarisation und deshalb in allen drei Abbildungen vorhanden.

mentären Elektrons in bezug zum festgehaltenen, wobei in Abbildung 5.4 (a) über alle Orientierungen der Polarisationsachse integriert wurde. Die Abbildungen 5.4 (b) und (c) stellen Teilmengen aus (a) dar, bei denen das erste Elektron einmal parallel und das andere Mal senkrecht zur Polarisation festgehalten wurde.

Die Struktur der Impulsverteilung wird im wesentlichen durch zwei Effekte dominiert: Wegen der Elektron-Abstoßung werden beide Elektronen hauptsächlich in entgegengesetzte Richtung emittiert. Der zweite Effekt ist durch die  $^1P_1$ -Symmetrie des Endzustandes bedingt. Diese Symmetrie führt zu den bekannten Auswahlregeln (aufgeführt in Kapitel 2.2.3):

Alle drei Verteilungen zeigen einen Knoten (markiert durch einen Stern), der auf Auswahlregel C zurückzuführen ist: Durch die negative Parität im Endzustand ist die Wellenfunktion für  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  Null. Da diese Auswahlregel unabhängig von der Polarisation gültig ist, ist sie in allen drei Abbildungen zu finden.

Auswahlregel A ist nur für  $\vartheta_1 = 90^\circ$  wirksam: Der Wirkungsquerschnitt ist Null, wenn beide Elektronen senkrecht zum Polarisationsvektor emittiert werden. Da diese Auswahlregel für alle Energieaufteilungen gültig ist, ist die Intensität der Winkelverteilung für  $e_2 \perp \varepsilon$  Null.

Nachdem eine Übersicht über den gesamten Drei-Teilchen-Aufbruch gegeben wurde, werden im folgenden die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte in der üblichen Winkeldarstellung gezeigt. Alle vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte werden

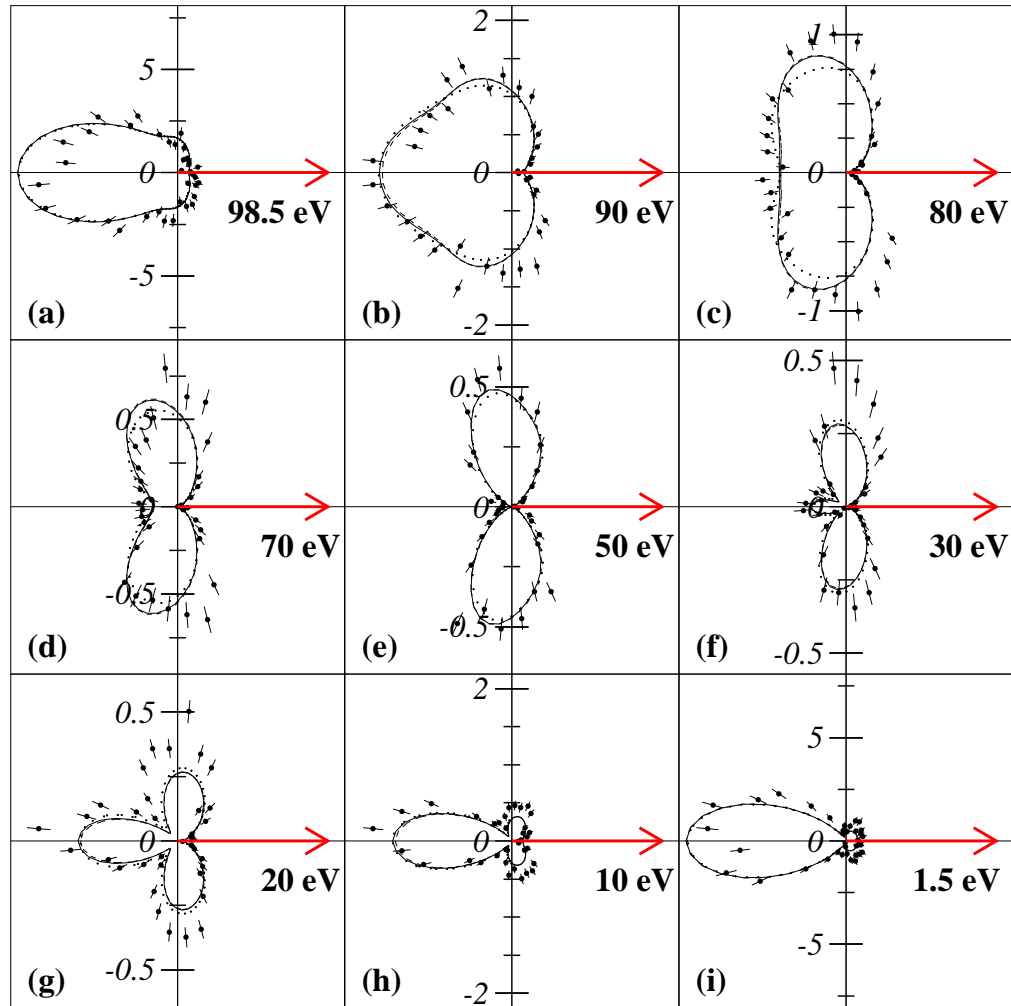


Abbildung 5.5: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium bei einer Photon-Energie von  $E_\gamma = 179$  eV auf absoluter Skala in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . In allen Abbildungen ist die Polarisation horizontal. Die Richtung und die Energie eines der beiden Elektronen ist festgehalten (Pfeil). Dargestellt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons, das sich in mit  $\pm 7^\circ$  innerhalb der Ebene befindet. Die Daten sind auf den präzise gemessenen absoluten Wirkungsquerschnitt von Samson *et al.* [83], [15] normiert. Die durchgezogene Linie stellt eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform dar. Die Rechnungen in Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform sind nahezu identisch, so daß die Beschleunigungsform (gestrichelte Linie) kaum sichtbar ist. Für alle Abbildungen gilt:  $-5^\circ < \vartheta_1 < 5^\circ$  (a)  $97 < E_1 < 100$  eV, (b)  $85 < E_1 < 95$  eV, (c)  $75 < E_1 < 85$  eV, (d)  $65 < E_1 < 75$  eV, (e)  $45 < E_1 < 55$  eV, (f)  $25 < E_1 < 35$  eV, (g)  $25 < E_1 < 35$  eV, (h)  $5 < E_1 < 15$  eV, (i)  $0 < E_1 < 3$  eV.

in koplanarer Geometrie gezeigt, d.h. in diesen hier abgebildeten Darstellungen sind die beiden Elektronen und der Polarisationsvektor in der Bildebene. Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis einer CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte in Beschleunigungsform. Die Abbildungen 5.5 bis 5.8 zeigen, wie der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt von der Energieaufteilung und dem Winkel des festgehaltenen Elektrons zum Polarisationsvektor abhängt. Es sind folgende Energieaufteilungen herausgegriffen worden:  $1,5 \text{ eV} \leftrightarrow 98,5 \text{ eV}$ ;  $10 \text{ eV} \leftrightarrow 90 \text{ eV}$ ;  $20 \text{ eV} \leftrightarrow 80 \text{ eV}$ ;  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 70 \text{ eV}$  und  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 50 \text{ eV}$ . Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor beträgt  $\vartheta_1 = 0^\circ, 15^\circ, 45^\circ$  und  $90^\circ$ .

Der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt für  $\vartheta_1 = 0^\circ$  (Abbildung 5.5) läßt eine starke Abhängigkeit der Winkelverteilung von der Energieaufteilung erkennen: Die Winkelverteilung des sehr langsamen Elektrons zeigt einen Lobe<sup>2</sup>, der unterschiedliche Formen annimmt: die Winkelverteilung des sehr langsamen  $1,5 \text{ eV}$  Elektrons hat die Gestalt einer Ellipse, während die Verteilung des  $E_2 = 10 \text{ eV}$  Elektrons die Form eines Herzens hat. Mit steigender Energie des langsamen Elektrons bilden sich zwei Lobes aus ( $E_2 = 30 \text{ eV}$  und  $E_2 = 50 \text{ eV}$ ). Bei gleicher Energieaufteilung gibt es einen Knoten in der Verteilung, der auf Auswahlregel C zurückzuführen ist. Gleichzeitig ist auch der Wirkungsquerschnitt für parallele Emission aufgrund der gegenseitigen Abstoßung der beiden Elektronen Null. Für  $E_2 > 50 \text{ eV}$  bildet sich ein dritter Lobe parallel zum Polarisationsvektor aus. Mit wachsender Energie des komplementären Elektrons verschiebt sich das Verhältnis von diesem dritten Lobe zu den anderen beiden. Dieser dritte Lobe wird mit zunehmend ungleicher Energieaufteilung größer in Relation zu den anderen beiden Lobes, die weitgehend senkrecht auf dem Polarisationsvektor stehen. Diese beiden noch separat voneinander getrennten Lobes senkrecht zum Polarisationsvektor wachsen zu einem einzigen Lobe zusammen. Bei einer Energie von  $E_2 = 98,5 \text{ eV}$  findet sich eine Winkelverteilung, die der Kontur eines Fisches ähnelt. Die CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform (durchgezogene Linie) zeigt gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, sowohl von der Form als auch vom Absolutwert.

Wie in Kapitel 2.6 erwähnt, kann der Dipoloperator durch eine Transformation auch in Längen- und Beschleunigungsform angegeben werden. Da alle Formen gleichwertig sind, müßte eine gute Theorie für alle Formen das gleiche Ergebnis liefern. Aufgrund diverser Näherungen bei der Berechnung existieren aber doch geringfügige Unterschiede zwischen den einzelnen Formen. Exemplarisch ist, um diese Übereinstimmung zu überprüfen, in Abbildung 5.5 neben der CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform auch die Rechnung in Längen- und Beschleunigungsform angegeben. Die Rechnungen in Längen-, in Geschwindigkeits- und in Beschleunigungsform stimmen sowohl bezüglich Größe als auch Form gut miteinander überein. Nach A. Kheifets und I. Bray ist die CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform die zuverlässigste [105]. Deshalb werden in den folgenden Winkeldarstellungen die experimentellen Daten mit der CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform verglichen.

---

<sup>2</sup>Der Begriff „Lobe“ wird in Kapitel 2.5.1 erläutert.

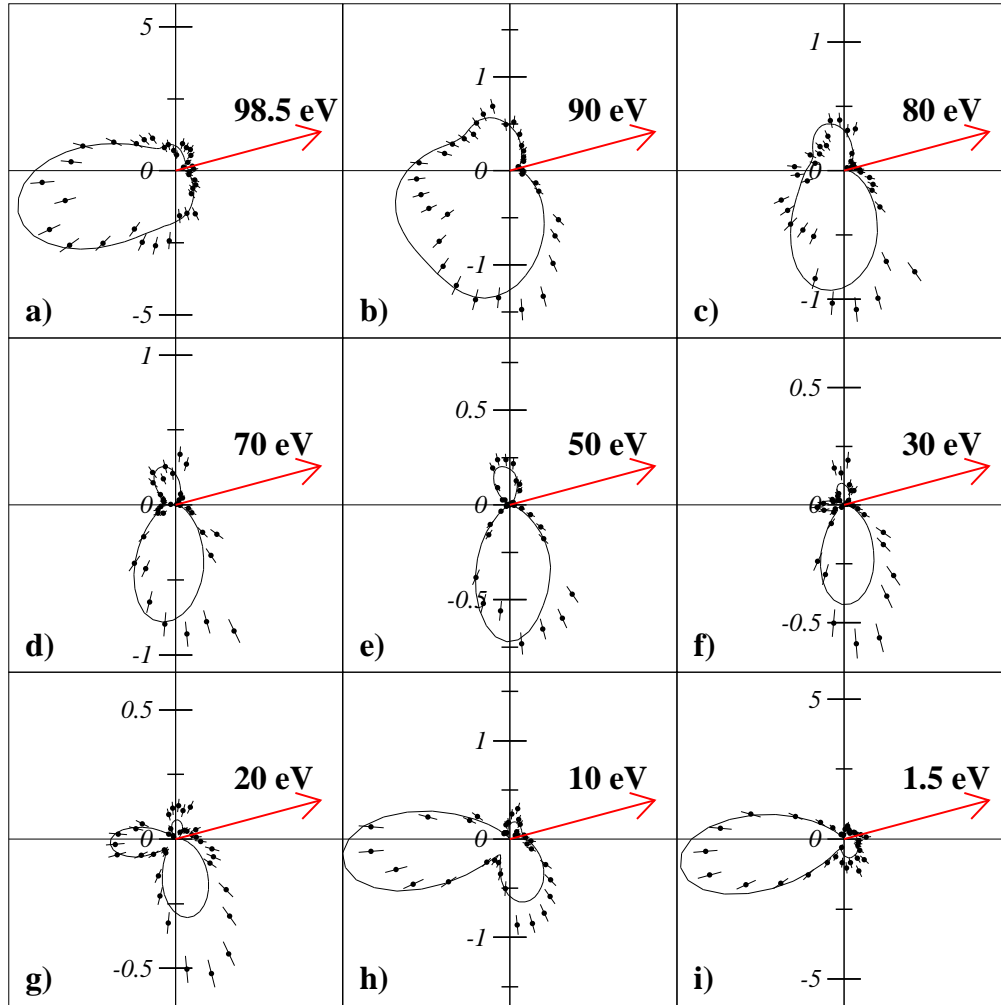


Abbildung 5.6: Analog zu Abbildung 5.5; Ausnahme: In allen Abbildungen ist der Winkel des festgehaltenen Elektrons zur Polarisationsachse  $\vartheta_1 = (15 \pm 10)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist mit  $\pm 15^\circ$  innerhalb der Ebene, die durch das festgehaltene Elektron und den Polarisationsvektor definiert ist. Die durchgezogene Linie stellt eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform dar.

Bei  $\vartheta_1 = 15^\circ$  (Abbildung 5.6) weist die Winkelverteilung eine andere Struktur auf. Da nun der Impuls des festgehaltenen Elektrons nicht mehr parallel zum Polarisationsvektor liegt, ist die Symmetrie der Winkelverteilung bezüglich der Polarisationsachse gebrochen. Für die Verteilung des langsamen 1,5 eV Elektrons ergibt sich eine „gekippte“ Ellipse. Mit wachsender Energie  $E_2$  werden die Lobes der Winkelverteilung etwas schmaler (Abbildung 5.6 (b) und (c)). Bei gleicher Energieaufteilung gibt es zwei Lobes, einen großen (im dritten und vierten Quadranten) und einen kleinen (im ersten und zweiten Quadranten). Mit größer werdendem  $E_2$  bildet sich wieder ein dritter Lobe parallel zum Polarisationsvektor aus.

Für  $\vartheta_1 = 45^\circ$  ist die Winkelverteilung des langsamen Elektrons, die vorher die Form einer Ellipse hatte, fast rund geworden. Mit wachsender Energie des komplementären

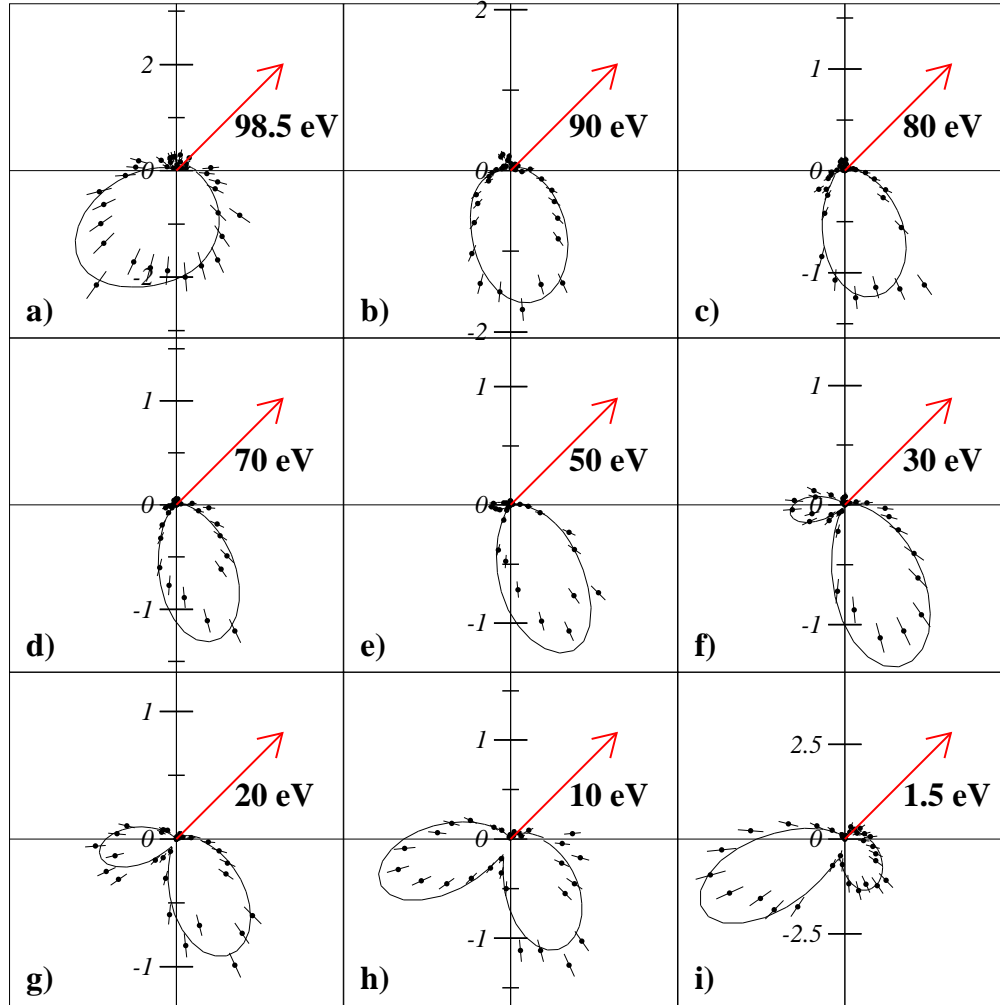


Abbildung 5.7: Analog zu Abbildung 5.5; außer: In allen Abbildungen ist der Winkel des festgehaltenen Elektrons zur Polarisationsachse  $\vartheta_1 = (45 \pm 3)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 15^\circ$  in der Ebene, die durch das festgehaltene Elektron und den Polarisationsvektor aufgespannt wird.

Elektrons existiert nur noch ein Lobe. Bei gleicher Energieaufteilung bildet sich ein zweites Lobe parallel zum Polarisationsvektor aus. Je größer die Energie des komplementären Elektrons ist, desto größer ist dieser Lobe parallel zum Polarisationsvektor. Bei einer Energie von  $E_1 = 10$  eV für das festgehaltene Elektron sind beide Lobes in etwa gleich groß.

Vergleicht man die Winkelverteilungen, insbesondere die Anzahl der Lobes für eine feste Energieaufteilung für verschiedene Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor, so gibt es wesentliche Unterschiede. Diese Unterschiede in den Winkelverteilungen beruhen jedoch *nicht* auf einer Änderung der Dynamik zwischen beiden Elektronen, sondern sind allein durch die geometrischen Faktoren, die die  $^1P_1$ -Symmetrie widerspiegeln, gegeben. Diese haben einen starken Einfluß auf die Winkelverteilung (siehe auch Abbildung 2.14). Obwohl also die Winkelverteilung in Abhängig-

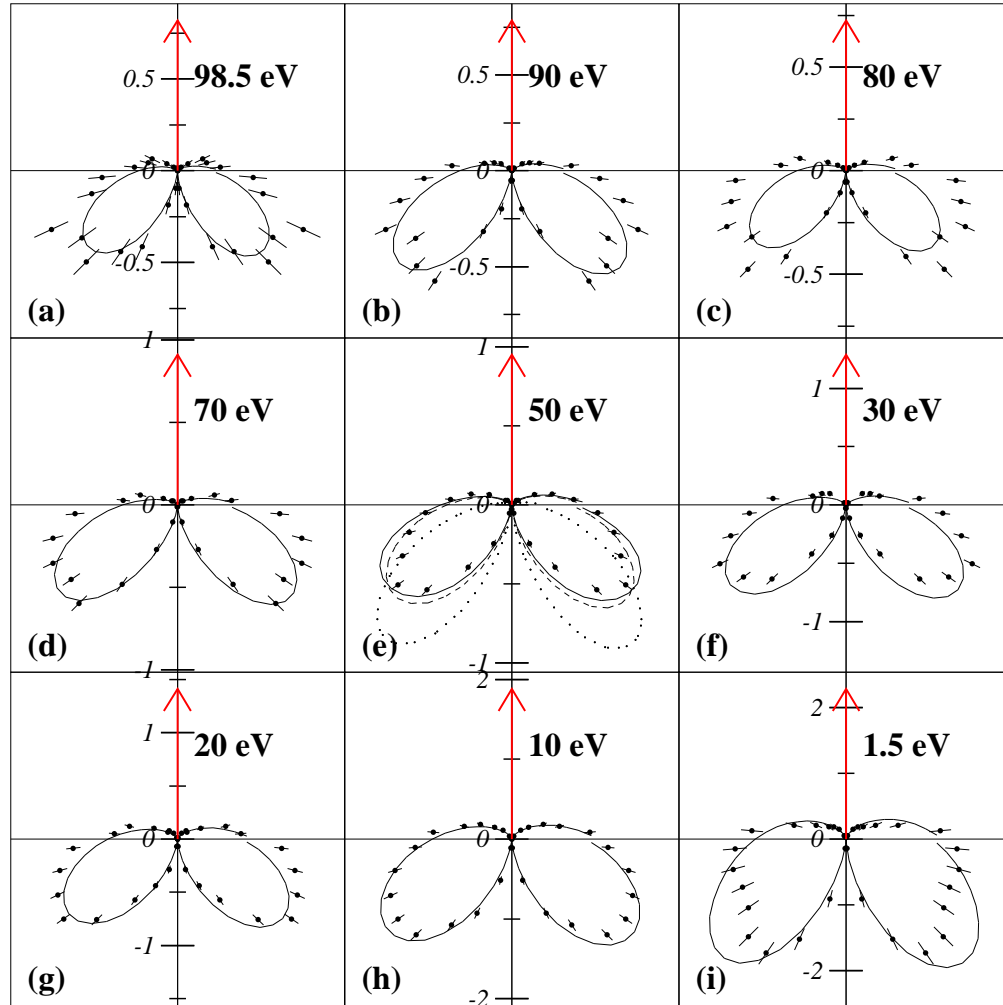


Abbildung 5.8: Analog zu Abbildung 5.5; Ausnahme: In allen Abbildungen ist der Winkel des festgehaltenen Elektrons zur Polarisationsachse  $\vartheta_1 = (90 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 15^\circ$  der Ebene, die durch das festgehaltene Elektron und den Polarisationsvektor definiert ist. Die Daten sind an der vertikalen Achse gespiegelt; d.h. die Daten im zweiten und dritten Quadranten sind gleich der Daten im ersten und vierten Quadranten. Im Fall gleicher Energieaufteilung sind zwei zusätzliche Winkelverteilungen dargestellt. Diese Linien stellen die Winkelverteilungen für  $E_1 = E_2 = 10$  eV (gestrichelte Linie) und  $E_1 = E_2 = 0,5$  eV (gepunktete Linie) dar; beide Winkelverteilungen stammen aus [6].

keit des Winkels eine Änderung in der Struktur aufweist, liegt das allein an der  $^1P_1$ -Symmetrie; die Elektron-Elektron-Korrelation ändert sich nicht.

Da für  $\vartheta_1 = 90^\circ$  (Abbildung 5.8) die geometrischen Faktoren für die gerade und ungerade Amplitude beide eine Dipolverteilung zeigen<sup>3</sup> (Auswahlregel A), ist der qualitative Verlauf aller Winkelverteilungen gleich. Diese Auswahlregel und die gegenseitige Abstoßung der Elektronen erlauben nicht viele Freiheiten innerhalb der Winkelverteilung. In allen Abbildungen ist eine Zwei-Lobe-Struktur sichtbar. Die Lage und die Breite der

<sup>3</sup>und zusätzlich  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$  durch eine Gaußsche Glockenkurve beschrieben werden können

Lobes ist aber von Abbildung zu Abbildung unterschiedlich. Dies liegt im wesentlichen an der Korrelationsbreite der geraden und der ungeraden Amplitude (siehe Kapitel 5.7).

Im Fall gleicher Energieaufteilung sind zwei zusätzliche Winkelverteilungen dargestellt. Diese Linien stellen die Winkelverteilungen für  $E_1 = E_2 = 10$  eV (gestrichelte Linie) und  $E_1 = E_2 = 0,5$  eV (gepunktete Linie) dar; beide Winkelverteilungen sind [6] entnommen.

Diese beiden Linien und die vorliegenden experimentellen Daten für  $E_1 = E_2 = 50$  eV unterscheiden sich in der Winkelposition der Lobe-Maxima, ihrer relativen Größe und ihrer Breite. Die Lobes von  $E_1 = E_2 = 0,5$  eV und  $E_1 = E_2 = 10$  eV sind schmaler als die des 50 eV Elektrons. Zusätzlich sind die Lobes mehr rückwärts gerichtet.

Wie in Kapitel 2.5.1 berichtet, hängt die Winkelverteilung bei gleicher Energieaufteilung allein von dem Quadrat der geraden Amplitude ab. Dieses Quadrat der geraden Amplitude läßt sich innerhalb des Gültigkeitsbereiches der Wannier-Näherung, also bei geringen Überschußenergien als Gauß'sche Glockenkurve darstellen, wobei die FWHM der Gauß-Kurve von der Energie über der Schwelle abhängt. Je größer die Photon-Energie, desto geringer ist die gegenseitige Abstoßung der Elektronen, was sich in der FWHM niederschlägt. Für die Winkelverteilung des  $E_1 = E_2 = 0,5$  eV Elektrons ist eine Gauß'sche Glockenkurve mit einer FWHM =  $68^\circ$  [6] und für das  $E_1 = E_2 = 20$  eV Elektron eine mit FWHM =  $91^\circ$  [6] angesetzt und diese mit dem geometrischen Faktor von  $\cos^2 \vartheta_2$  gewichtet worden. Für 100 eV über der Schwelle finden wir eine FWHM =  $121^\circ \pm 3^\circ$ .

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß mit abnehmender Photon-Energie die Lobes schmaler werden und mehr rückwärts gerichtet sind: Dies ist allein das Ergebnis der Abstoßung der beiden Elektronen, die mit abnehmender Überschußenergie zunimmt.

## 5.4 Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts mit zirkular polarisiertem Licht

Einen Überblick über die Struktur des Drei-Teilchen-Aufbruchs im Endzustand zeigt Abbildung 5.9. Betrachtet wird die Impulsverteilung des komplementären Elektrons  $e_2$  für eine feste Richtung von  $e_1$ , die durch einen Pfeil gekennzeichnet ist. Beide Elektronen sind senkrecht zur Strahlausbreitung festgehalten. Die Lichtausbreitungsrichtung steht senkrecht zur Bildebene. In der linken Abbildung ist das Licht links zirkular polarisiert, in der rechten Abbildung rechts zirkular polarisiert. Der äußere Kreis kennzeichnet den Ort, wo Elektron  $e_2$  die gesamte Überschußenergie von 100 eV aufgenommen hat, der innere Kreis kennzeichnet die Situation, in der beide Elektronen eine Energie von 50 eV besitzen.

Drei physikalische Effekte sind sichtbar:

- Durch Abstoßung werden die beiden Elektronen überwiegend in entgegengesetzte



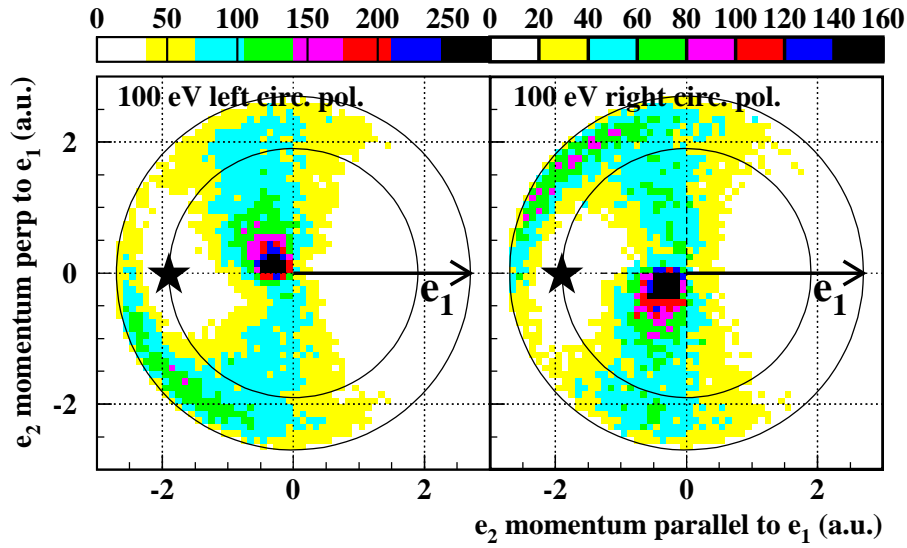


Abbildung 5.9: Impulsverteilung des zweiten Elektrons  $e_2$  mit Berücksichtigung des ersten Elektrons  $e_1$  für  $E_{exc} = 100$  eV über der Schwelle. Links: links zirkular polarisiertes Licht; rechts: rechts zirkular polarisiertes Licht. Die beiden Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Strahlausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 7^\circ$ . Der Pfeil kennzeichnet die Richtung des ersten Elektrons  $e_1$ . Der äußere Kreis kennzeichnet den maximal möglichen Impuls. Der innere Kreis kennzeichnet den Ort aller Events mit gleicher Energieaufteilung. Der Stern markiert den Ort des Knotens bei  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  (Auswahlregel C). Dieser Knoten ist unabhängig von der Polarisation und deshalb in beiden Abbildungen vorhanden.

Hemisphären emittiert.

- Durch die  $^1P_1$ -Symmetrie gibt es einen Knoten (wieder durch einen Stern markiert) bei  $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$  (Auswahlregel C).
- Im Gegensatz zur Impulsverteilung für die Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht ist die Impulsverteilung des komplementären Elektrons nicht symmetrisch zur horizontalen Achse, die durch die Richtung des festgehaltenen Elektrons gegeben ist. Mehr noch, sie zeigt eine Wirbel-Struktur. Diese Wirbel-Struktur hat nichts mit den in Kapitel 2.2.3 aufgelisteten Auswahlregeln zu tun; sie ist ein Resultat der Dynamik zwischen beiden Elektronen, die durch das rotierende elektrische Feld getrieben werden.

Für einen besseren Vergleich mit der Theorie wird der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt mit rechts zirkular polarisiertem Licht auf absoluter Skala in den üblichen Polarwinkeln gezeigt (Abbildung 5.10). Um einen größeren Statistikumfang zu bekommen, sind alle Events beider Experimente mit links- und rechts-zirkular polarisiertem Licht nach Gleichung 2.6 addiert worden. Die beiden Elektronen befinden sich in einer Ebene senkrecht zur Lichtausbreitung. In Abbildung 5.10 ist die Lichtausbreitung senkrecht zur Bildebene dargestellt. Die Abbildung zeigt die Winkelverteilung des komplementären Elektrons unter Berücksichtigung des festgehaltenen Elektrons. Die durch-

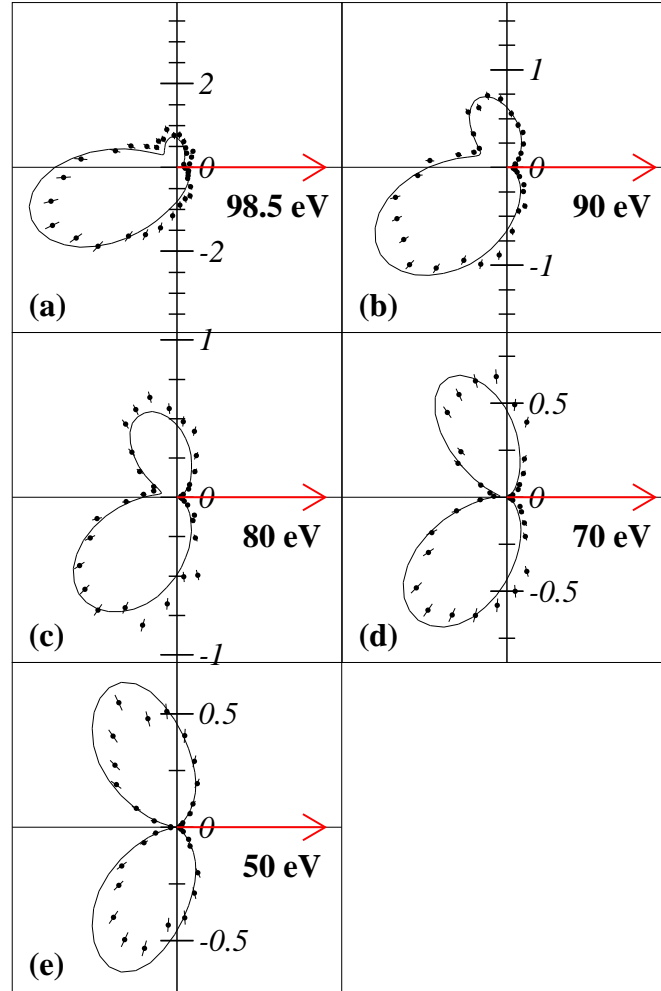


Abbildung 5.10: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium mit einer Photon-Energie von  $E_\gamma = 179$  eV auf absoluter Skala in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . Die beiden Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Strahlausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 7^\circ$ . Die Richtung und die Energie von einem der beiden Elektronen ist festgehalten (Pfeil). Dargestellt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die Messungen sind auf präzise gemessene Wirkungsquerschnitte von Samson *et al.* [83], [15] normiert. Die 5DCS von links zirkular polarisiertem Licht sind gespiegelt und zu den 5DCS von rechts zirkular polarisiertem Licht addiert. Energie-Integrationsgrenzen: (a)  $97 < E_1 < 100$  eV, (b)  $85 < E_1 < 95$  eV, (c)  $75 < E_1 < 85$  eV, (d)  $65 < E_1 < 75$  eV, (e)  $45 < E_1 < 55$  eV.

gezogene Linie markiert wieder die CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die Abbildung zeigt die Abhängigkeit des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnittes von der Energieaufteilung. Es wurden die gleichen Energieaufteilungen herausgegriffen wie in Abbildung 5.5 bis 5.8.

Für alle ungleichen Energieaufteilungen kann der Zirkulare Dichroismus qualitativ gesehen werden. Bei gleicher Energieaufteilung ist die Winkelverteilung symmetrisch zur horizontalen Achse: Weil beide Elektronen nicht unterscheidbar sind, verschwindet hier der Zirkulare Dichroismus. Die Winkelverteilung besteht aus zwei gleichen Lobes, der Knoten stammt von Auswahlregel C. Bei leicht ungleicher Energieaufteilung wird der Lobe im zweiten Quadrant kleiner, während der Lobe im dritten Quadrant wächst. Für  $E_1 = 98,5$  eV ist der Lobe im zweiten Quadrant kaum noch sichtbar, so daß die Winkelverteilung nur noch aus einem Lobe zu bestehen scheint. Die CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform stimmt gut mit den experimentellen Daten überein.

## 5.5 Zirkularer Dichroismus

Um den Zirkularen Dichroismus quantitativ zu untersuchen, soll der normierte Zirkulare Dichroismus  $CD_n$  (Abbildung 5.11) betrachtet werden: Bei gleicher Energieaufteilung verschwindet  $CD_n$  wegen der Nichtunterscheidbarkeit der Elektronen. Für alle asymmetrischen Energieaufteilungen ist ein recht großer  $CD_n$  zu finden; sein maximaler Wert  $CD_{n,max}$  ist unabhängig von der Energieaufteilung:  $CD_{n,max} \cong 0,7$ . Abhängig von der Energieaufteilung ist jedoch die  $\varphi_{12}$ -Position von  $CD_{n,max}$ : Da  $CD_n$  punktsymmetrisch bezüglich  $\varphi_{12} = 180^\circ$  ist, wird für die folgende Erläuterung nur der Bereich  $0^\circ \leq \varphi_{12} \leq 180^\circ$  betrachtet: Bei extrem ungleicher Energieaufteilung ist ein  $CD_{n,max}$  bei einem Winkel von  $\varphi_{12} \cong 135^\circ$  zu finden. Geht man Richtung gleicher Energieaufteilung, verschiebt sich  $CD_{n,max}$  zu größeren  $\varphi_{12}$ -Winkeln. Bei einer Energieaufteilung von 30 eV  $\leftrightarrow$  70 eV befindet sich  $CD_{n,max}$  bei  $\varphi_{12} \cong 170^\circ$ . Die Verschiebung der Extrema  $CD_{n,max}$  von  $180^\circ$  weg bei zunehmender asymmetrischer Energieaufteilung verursacht eine größere Steigung des Nulldurchgangs bei  $\varphi_{12} = 180^\circ$ .

Ein Vergleich mit  $CD_n$  bei 20 eV über der Schwelle (Achler *et al.* [64]) ergibt folgendes: Für 20 eV und 100 eV ist jeweils ein konstantes Extremum  $CD_{n,max}$  für fast alle ungleichen Energieaufteilungen vorhanden. Für 20 eV über der Schwelle ist  $CD_{n,max} \cong 0,7$  (Experiment), CCC berechnet  $CD_{n,max} \cong 0,9$ , einen etwas höher liegenden Wert.

Nach J. Berakdar, nimmt  $CD_n$  mit  $\sqrt{E_{exc}}$  nahe der Schwelle ( $E_{exc} \rightarrow 0$ ) ab und ist proportional zu  $(\sqrt{1/E_{exc}})$  für hohe Photonenergien ( $E_{exc} \rightarrow \infty$ ) [62]. Es bleibt zunächst offen, bei welcher Photonenergie ein Abfall vom Zirkularen Dichroismus stattfindet.

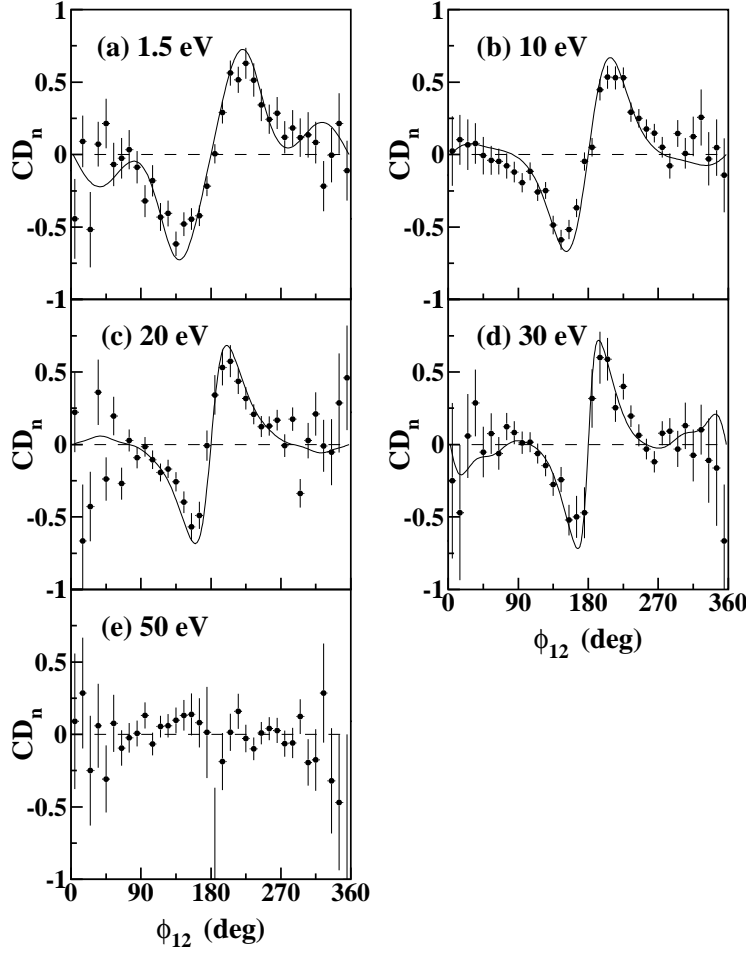


Abbildung 5.11:  $CD_n$  als Funktion von  $\varphi_{12}$  für fünf verschiedene Energieaufteilungen 100 eV über der Schwelle. Die zwei Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Strahlausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 7^\circ$ . Energie-Integrationsgrenzen analog zu Abbildung 5.10.

## 5.6 Konsistenz-Überprüfung

Wie in Kapitel 2.4 erwähnt, kann ein erster Konsistenz-Check unter Benutzung von Gleichung 2.6 vorgenommen werden. Wenn keine systematischen Fehler vorhanden sind, muß  $CD_n$  innerhalb der statistischen Fehlerbalken bezüglich  $\varphi_{12} = 180^\circ$  punktsymmetrisch sein. Der Verlauf von  $CD_n$  enthält für alle Energieaufteilungen keine Hinweise auf systematische Fehler. Obwohl die Übereinstimmung der gemessenen Daten mit der CCC-Rechnung gut ist, muß geklärt werden, ob die Daten mit linear polarisiertem Licht zu den Daten mit zirkular polarisiertem Licht konsistent, d.h. widerspruchsfrei sind. Jamal Berakdar hat einen Konsistenz-Check [76] vorgeschlagen, der beide Datensätze verwendet, siehe Kapitel 2.5.3.

Abbildung 5.12 zeigt diesen Konsistenz-Check. Die vollen Kreise stellen die Summe aus  $5DCS_{\varepsilon_x} + 5DCS_{\varepsilon_y}$  dar, die offenen Quadrate die Summe aus den 5DCS von links und

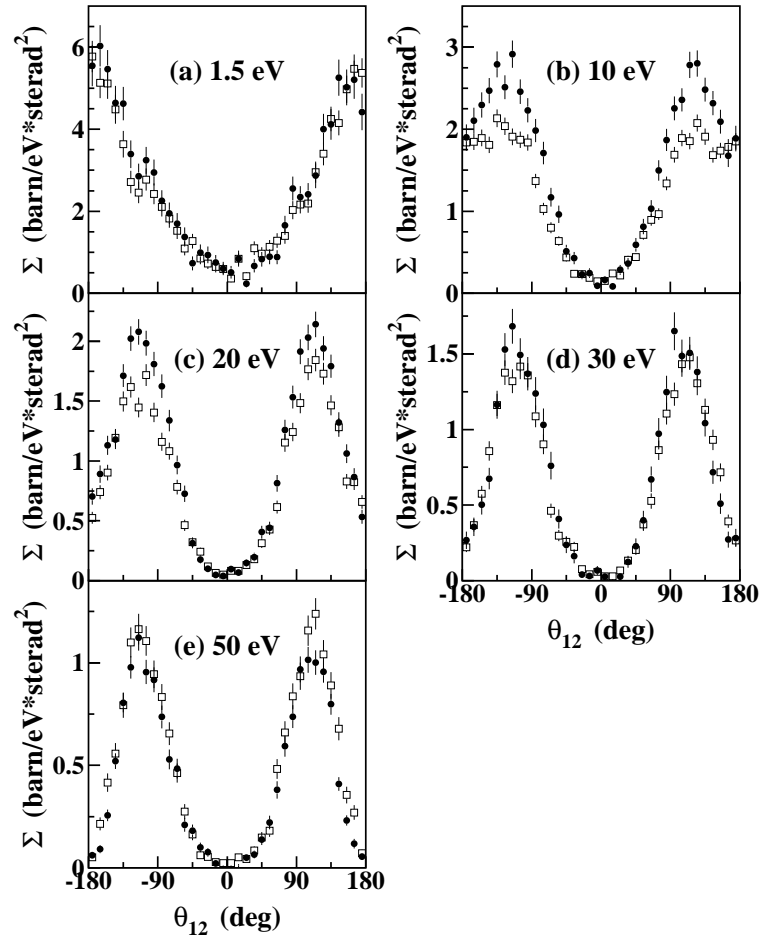


Abbildung 5.12: Konsistenz-Check. Volle Kreise: linear polarisiertes Licht, dargestellt ist die Summe aus  $5DCS_{\varepsilon_x}$  und  $5DCS_{\varepsilon_y}$ . Offene Quadrate: zirkular polarisiertes Licht, dargestellt ist die Summe aus  $5DCS_{\sigma^-}$  und  $5DCS_{\sigma^+}$ . Zirkular polarisiertes Licht: Energie- und Winkelintegration wie in Abbildung 5.11. Linear polarisiertes Licht  $\varepsilon_x$ : Energie- und Winkelintegration wie in Abbildung 5.5. Linear polarisiertes Licht  $\varepsilon_y$ : Energie- und Winkelintegration wie in Abbildung 5.8 (a-e). Der Konsistenz-Check zeigt, daß keine Hinweise auf systematische Fehler erkennbar sind.

rechts zirkular polarisiertem Licht. Hinweise auf systematische Fehler sind nicht erkennbar.

## 5.7 Amplituden und deren Relativphase

In diesem Kapitel werden die Quadrate der geraden und der ungeraden Amplituden sowie die Phasen  $\Phi$  zwischen  $|a_g|$  und  $|a_u|$  betrachtet. Da ein vollständiger<sup>4</sup> COLTRIMS-Datensatz zur Photodoppelionisation von Helium zur Verfügung steht, können unter Verwendung der Extraktionsmethode, wie sie in Kapitel 4.5 beschrieben ist, die Quadrate beider Amplituden errechnet werden.

<sup>4</sup>„vollständig“ heißt hier, daß der gesamte Phasenraum mit konstanter Effizienz nachgewiesen wurde.

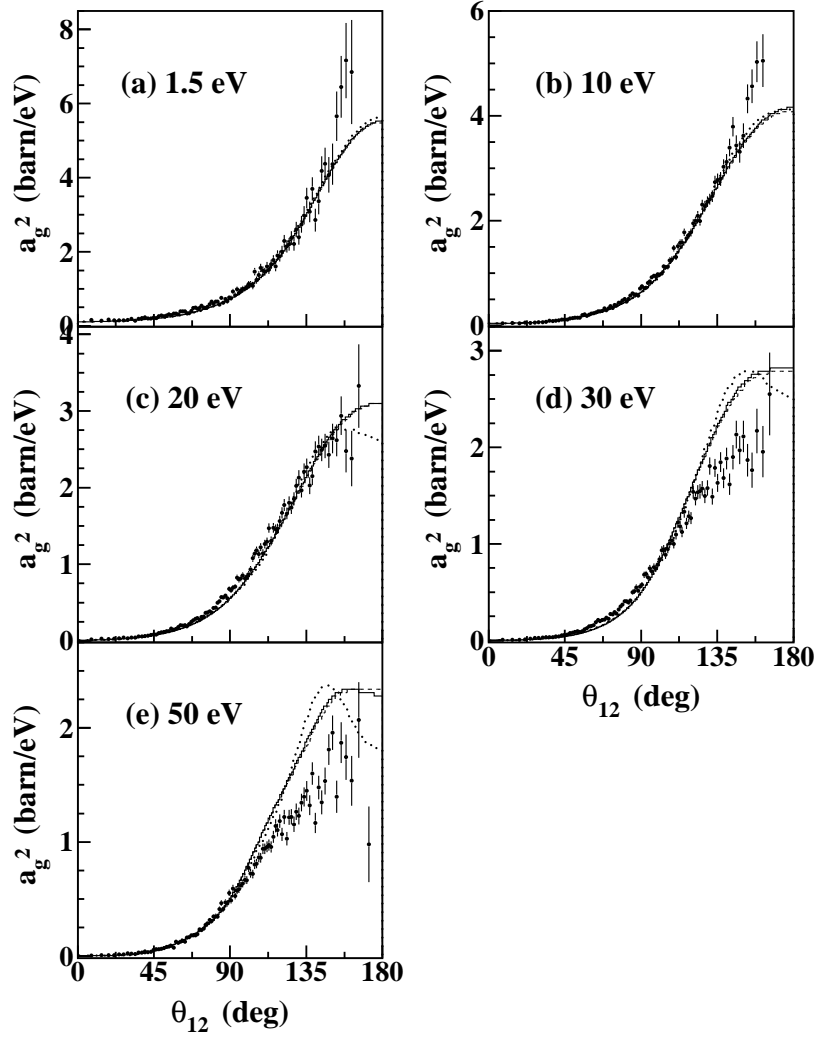


Abbildung 5.13: Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  bei  $E_{exc} = 100$  eV auf absoluter Skala. Der gesamte COLTRIMS Datensatz für linear polarisiertes Licht wurde für die Extraktion von  $|a_g|^2$  herangezogen. Die durchgezogene Linie gibt das Ergebnis einer CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform wieder, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen von einem der beiden Elektronen: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $15 < E_e < 25$  eV, (d)  $25 < E_e < 35$  eV, (e)  $45 < E_e < 55$  eV.

Abbildung 5.13 zeigt das Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  für fünf verschiedene Energieaufteilungen. Die durchgezogene Linie stellt wieder das Ergebnis einer CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform dar. Die gepunktete und die gestrichelte Linie sind eine CCC-Rechnung in Längen- und Beschleunigungsform. Die gewählten Energieaufteilungen sind die gleichen wie in den vorangegangenen Kapiteln.

Der Verlauf von  $|a_g|^2$  zeigt für alle Energieaufteilungen eine glatte Funktion mit einem Minimum bei paralleler und einem Maximum bei antiparalleler Emission der beiden Elektronen. Die experimentellen Daten stimmen mit der CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform gut überein. Bei ungleicher Energieaufteilung liegt das Maximum

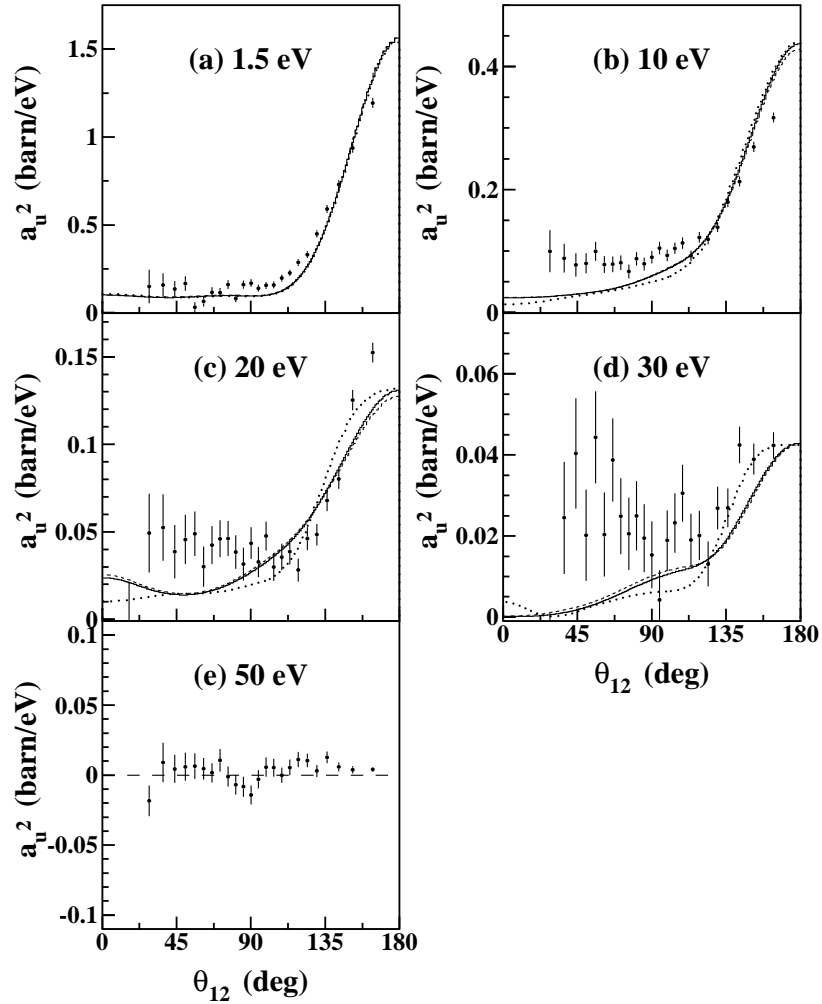


Abbildung 5.14: Quadrat der ungeraden Amplitude  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 100$  eV auf absoluter Skala. Der gesamte COLTRIMS-Datensatz für linear polarisiertes Licht wurde für die Extraktion von  $|a_u|^2$  genutzt. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen wie in Abbildung 5.13. Für eine bessere Übersicht ist eine gestrichelte Linie für  $|a_u|^2 = 0$  in Abbildung (e) gezogen.

bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ ; bei gleicher Energieaufteilung ist das Maximum - sowohl in den experimentellen Daten als auch in der Geschwindigkeitsform der CCC-Rechnung - leicht zu kleineren Winkeln hin verschoben. Das Maximum bei  $180^\circ$  ist auf die gegenseitige Abstoßung der beiden Elektronen zurückzuführen.

Bei gleicher Energieaufteilung findet man die kinematische Auswahlregel: Der Wirkungsquerschnitt für gleiche Energieaufteilung ist Null, wenn beide Elektronen in die gleiche Richtung emittiert werden ( $|a_g|^2 = 0$  bei  $\vartheta_{12} = 0^\circ$ ).

Das Quadrat der geraden Amplitude zeigt für eine Energieaufteilung von  $1,5 \text{ eV} \leftrightarrow 98,5 \text{ eV}$ , daß diese kinematische Auswahlregel für ungleiche Energieaufteilung nicht mehr exakt gültig ist. Die Geschwindigkeitsdifferenz zwischen den beiden Elektronen ist groß genug, so daß sie in die gleiche Richtung emittiert werden können.

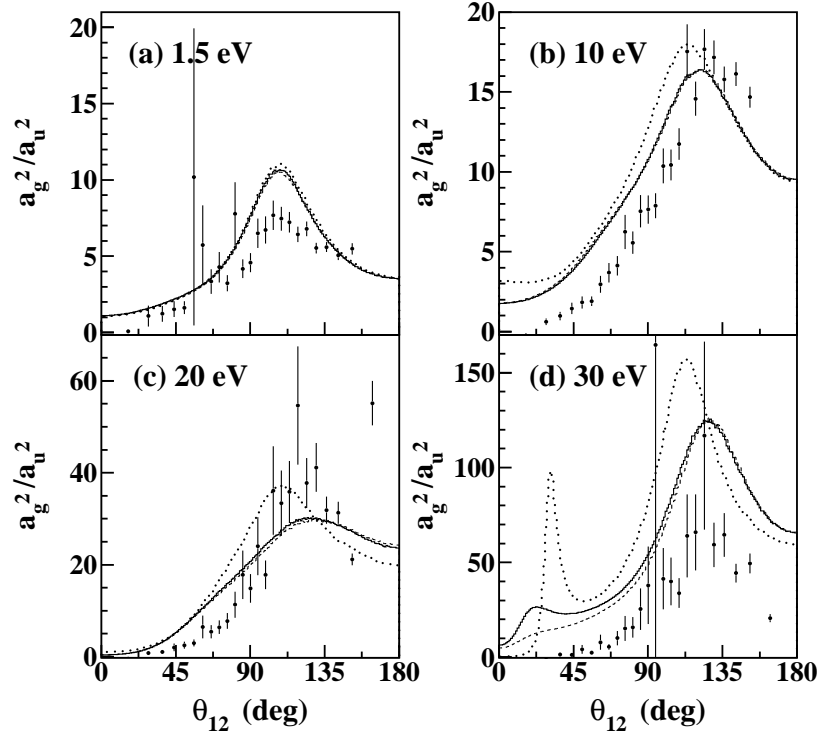


Abbildung 5.15: Verhältnis von  $|a_g|^2$  zu  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 100$  eV. Der gesamte COLTRIMS Datensatz für linear polarisiertes Licht wurde für die Extraktion von  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$  verwendet. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen wie in Abbildung 5.13.

Dies kann schon anhand der Winkelverteilungen für linear polarisiertes Licht im Falle ungleicher Energieaufteilung beobachtet werden, da die Winkelverteilung für parallele Emission allein durch  $|a_g|^2$  gegeben ist:

$$5DCS_{0^\circ}(E_1, E_2, \vartheta_1 = 0^\circ, \vartheta_{12} = 0^\circ) = 4 |a_g(E_1, E_2, \vartheta_{12} = 0^\circ)|^2. \quad (5.1)$$

$|a_g|^2$  ist bei  $\vartheta_{12}=0^\circ$  nur für gleiche Energieaufteilung Null, bei allen anderen kann man eine Magnitude ungleich Null für parallele Emission erkennen. Besonders deutlich ist die Magnitude für die Winkelverteilung bei einer Energieaufteilung von  $1,5 \text{ eV} \leftrightarrow 98,5 \text{ eV}$  (Abbildungen 5.5(a) und (i)).

Vergleicht man die CCC-Rechnungen untereinander, so ist folgendes festzustellen: Bei sehr ungleicher Energieaufteilung stimmen alle drei Formen gut miteinander überein, während bei gleicher, bzw. fast gleicher Energieaufteilung Abweichungen auftreten, besonders stark bei der Längenform. Diese Abweichungen sind auch schon in den Winkelverteilungen (Abbildung 5.5) vorhanden, fallen aber nicht ins Auge, da wegen der Multiplikation von  $|a_g|^2$  mit dem geometrischen Faktor, diese Abweichungen bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  keinen wesentlichen Einfluß auf die gerechneten Winkelverteilungen haben (Auswahlregel C).



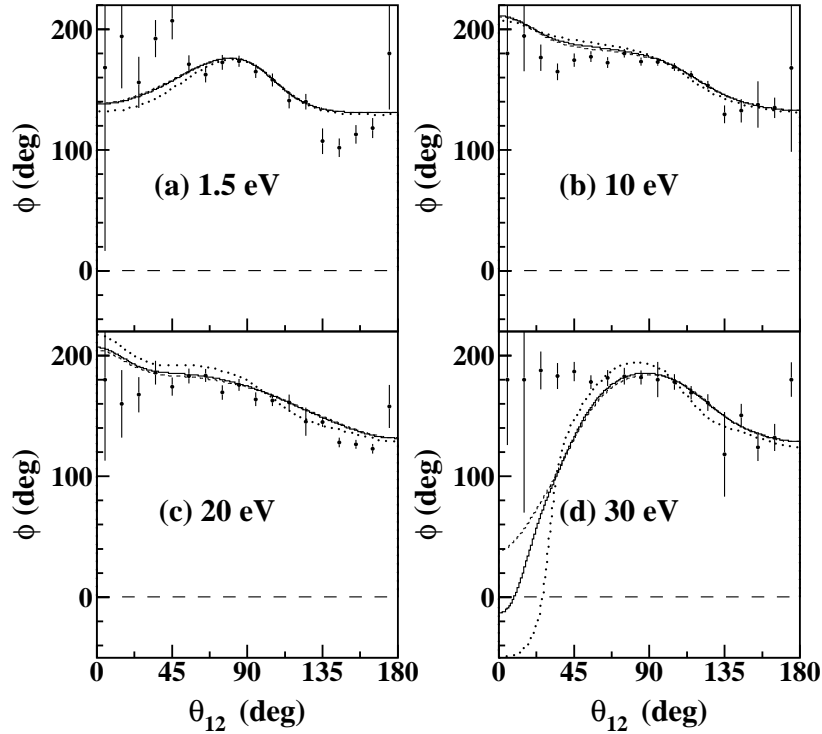


Abbildung 5.16: Phase zwischen  $|a_g|$  und  $|a_u|$  bei  $E_{exc} = 100$  eV. Das Spektrum beinhaltet den gesamten COLTRIMS-Datensatz für linear und zirkular polarisiertes Licht. Die Phase  $\Phi$  ist definiert durch  $\sin \Phi = CD / (-4 \cdot \sin \varphi_{12} \cdot |a_g| \cdot |a_u|)$ . Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen von einem der beiden Elektronen für linear und zirkular polarisiertes Licht. Für linear polarisiertes Licht: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $15 < E_e < 25$  eV, (d)  $25 < E_e < 35$  eV, (e)  $45 < E_e < 55$  eV. Für zirkular polarisiertes Licht: Die zwei Elektronen sind senkrecht zur Strahlausrichtung festgehalten:  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 7^\circ$ . Die gestrichelte Linie stellt die Linie für  $\Phi = 0^\circ$  dar.

Interessanterweise ist die Verteilung für  $|a_g|^2$  mit dem Maximum bei  $180^\circ$  und einem Minimum bei  $0^\circ$  mit einer Gauß'schen Normalverteilung vergleichbar. Diese Verteilung der Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  war bereits aus der Wannier-Näherung abgeleitet worden. Wie in den Kapiteln 5.1 und 5.2 geschildert, findet der Aufbruch des Elektronen-Paares aber vorwiegend parallel zur Polarisation statt, was bedeutet, daß die Wannier-Näherung bei 100 eV über der Schwelle nicht mehr gültig ist.

Während der qualitative Verlauf von  $|a_g|^2$  keine wesentliche Abhängigkeit von der Energieaufteilung aufweist, ist der qualitative Verlauf von  $|a_u|^2$  *abhängig* von der Energieaufteilung: Bei extrem ungleicher Energieaufteilung findet sich - wie schon bei  $|a_g|^2$  - eine Gauß-ähnlicher Verlauf, der allerdings eine kleinere Halbwertsbreite aufweist.

Für alle ungleichen Energieaufteilungen ist das Maximum der Verteilung bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  zu finden. Das Verhältnis vom Maximum bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  zum Minimum bei  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  nimmt bei zunehmend symmetrischer Energieaufteilung ab. Die Korrelationsweite ist kleiner als bei  $|a_g|^2$ . Es gibt eine Wahrscheinlichkeit für parallele Emission.

Für gleiche Energieaufteilung verschwindet  $|a_u|^2$ .

Im ganzen findet man gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit der CCC-Rechnung; jedoch treten geringe Abweichungen bei kleinen  $\vartheta_{12}$  auf: Die experimentell ermittelten  $|a_u|^2$  sind für kleine  $\vartheta_{12}$  größer als alle drei nach der CCC-Methode errechneten Formen.

Insgesamt zeigt der Verlauf der geraden und der ungeraden Amplitude, daß die Elektron-Elektron-Abstoßung bei dieser Energie von 100 eV über der Schwelle einen wesentlichen Einfluß auf die Dynamik der beiden Elektronen besitzt. Dieser Einfluß ist jedoch geringer als bei der Photodoppelionisation bei  $E_{exc} < 100$  eV.

Abbildung 5.15 zeigt das Verhältnis von  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$ . Dessen maximaler Wert ist für fast gleiche Energieaufteilung höher als für sehr ungleiche. Dies ist leicht einzusehen, da für gleiche Energieaufteilung die ungerade Amplitude verschwindet. Je ungleicher die Energieaufteilung, desto größer ist der Einfluß der ungeraden Amplitude auf die Winkelverteilung. Dieses Verhalten, daß nämlich die ungerade Amplitude relativ zur geraden mit zunehmend asymmetrischer Energieaufteilung wächst, sollte bei jeder beliebigen Photon-Energie gleich sein. Es ist zu erwarten, daß der Einfluß der ungeraden Amplitude auf den vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitt bei der Überschußenergie  $E_{exc} = 450$  eV größer sein wird als bei  $E_{exc} = 100$  eV (vergleiche hierzu Kapitel 2.5.1).

Es ergibt sich wieder gute Übereinstimmung mit der CCC-Theorie; anzumerken ist jedoch, daß die Verhältnisse der experimentell extrahierten Amplituden bei einer Energieaufteilung von  $10 \text{ eV} \leftrightarrow 90 \text{ eV}$  und  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 70 \text{ eV}$  kleiner sind als es die Rechnung liefert, was durch ein höheres  $|a_u|^2$  in Relation zur CCC-Rechnung bei der jeweiligen Energieaufteilung erklärbar ist.

Für die vollständige Information wird die Phase zwischen der geraden und der ungeraden Amplitude benötigt. Mittels der Methode aus Kapitel 4.5 läßt sich der Cosinus der Phase  $\Phi$  ermitteln. Gleichung 2.14 liefert den Sinus der Phase. Beide Komponenten ergeben die Phase.

In Abbildung 5.16 ist die Phase  $\Phi$  dargestellt, die unter Berücksichtigung der Daten mit zirkular polarisiertem Licht extrahiert wurde. Der Winkel der Phase zeigt – im Vergleich zu  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$  – keine große Abhängigkeit vom Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  und liegt bei  $\Phi \cong 180^\circ$ ; die Phase  $\Phi$  zeigt tendenziell für kleine Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  einen größeren Wert ( $\Phi \cong 200^\circ$ ) als für große Zwischenwinkel ( $\Phi \cong 140^\circ$  bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ ).

Beträgt der Phasenwinkel exakt  $\Phi = 180^\circ$ , so ist der Sinus  $\Phi$  gleich Null und gemäß Gleichung 2.14 ist der Zirkulare Dichroismus ebenfalls Null. Für Werte  $\Phi < 180^\circ$  ist Sinus  $\Phi$  positiv und für Werte  $\Phi > 180^\circ$  ist Sinus  $\Phi$  negativ. Dies zeigt, daß die Phase ein wesentlicher Bestandteil der Dynamik der beiden Elektronen ist. Sie ist allein die Ursache für einen Wechsel des Zirkularen Dichroismus innerhalb eines Wertebereiches  $\vartheta_{12}$  von  $0^\circ$  bis  $180^\circ$ . Ist jedoch der Phasenwinkel konstant, so ist die Änderung des zirkularen Dichroismus ausschließlich durch die Geometrie der beiden Elektronen und der geraden und ungeraden Amplitude gegeben.

# Kapitel 6

## Ergebnisse der Photodoppelionisation 450 eV über der Schwelle

Für eine Übersicht über die Ergebnisse werden die einfach- und doppeldifferentiellen Wirkungsquerschnitte dargestellt und mit denen für  $E_{exc} \leq 100$  eV verglichen. Die Ergebnisse zu den einfach- und doppeldifferentiellen Wirkungsquerschnitten legen einen Zwei-Stufen-Mechanismus der Doppelionisation nahe, bei dem das schnelle Elektron Energie und Drehimpuls des Photons absorbiert und das zweite, langsamere Elektron durch den Shake-off oder den Two-Step-One-Mechanismus (TS1) ins Kontinuum gelangt.

In Kapitel 6.2 werden dann für einen näheren Vergleich zwischen Experiment und Theorie die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte in der üblichen Winkeldarstellung gezeigt. Dabei zeigt sich anhand der Winkelverteilungen, daß bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung der Shake-off dominiert, während langsame Elektronen mit einer Energie  $E_1 \geq 30$  eV einen (e,2e)-Stoß brauchen, um ins Kontinuum zu gelangen.

Die Dominanz der beiden Mechanismen bei unterschiedlichen Energieaufteilungen wird durch den Verlauf der Quadrate der geraden und der ungeraden Amplitude untermauert (Kapitel 6.6).

### 6.1 Einfachdifferentielle Wirkungsquerschnitte und der $\beta$ -Parameter

Abbildung 6.1 oben zeigt den einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitt bei einer Energie von 450 eV über der Schwelle. Die Verteilung hat die ausgeprägte Form einer Wanne: In der überwiegenden Zahl der Fälle geht aus der Photodoppelionisation ein sehr schnelles und entsprechend ein sehr langsames Elektron hervor. Diese asymmetrische Energieaufteilung ist bei 450 eV wesentlich stärker ausgeprägt als bei 100 eV über der Schwelle.

Die untere Abbildung zeigt den gemessenen und gerechneten Anisotropie-Parameter

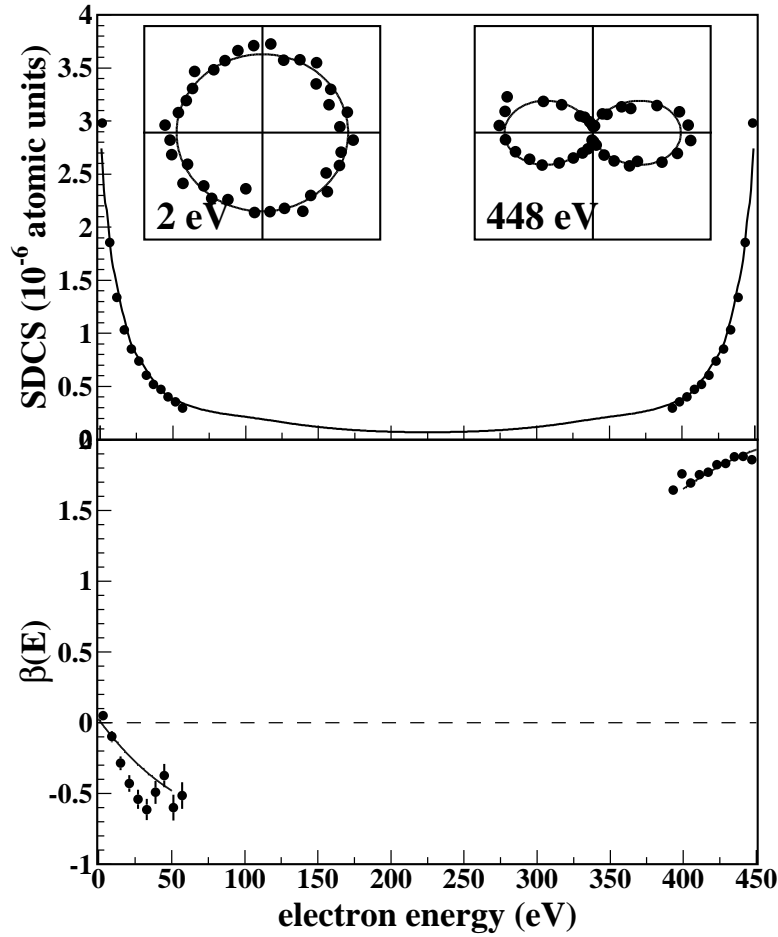


Abbildung 6.1: oben: Einfachdifferentieller Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/dE$ . Die durchgezogene Linie zeigt das Ergebnis einer CCC-Rechnung. Die kleinen Abbildungen zeigen den doppeltdifferentiellen Wirkungsquerschnitt DDCS  $d^2\sigma/(d\Omega dE)$  bei  $E = 2$  eV und 448 eV. Die experimentellen Daten wurden auf die CCC-Rechnung normiert. Unten: Der Anisotropie-Parameter  $\beta$  ist gegen die Elektronenenergie aufgetragen. Die durchgezogene Linie stellt das Ergebnis einer CCC-Rechnung dar. Abbildung aus Knapp *et al.* [106].

$\beta$ . Für ihn ist eine zuverlässige CCC-Rechnung nur bei  $E_2 \leq 50$  eV und  $E_1 \geq 400$  eV vorhanden [105]. Die Elektronen mit 0 eV nehmen den Wert  $\beta = 0$  an, wie es auch bei ganz langsamen Elektronen für 100 eV über der Schwelle der Fall ist. Die sehr schnellen Elektronen, die bei 100 eV einen Anisotropie-Parameter von  $\beta = 1,3$  haben, besitzen bei 450 eV einen Anisotropie-Parameter von  $\beta \cong 2$ . Ein Anisotropie-Parameter von  $\beta \cong 2$  bedeutet, daß das schnelle Elektron fast den gesamten Drehimpuls des Photons trägt.

### Zwei-Stufen-Prozeß und Hinweis auf eine Dominanz des Shake-offs bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung

Eine extrem asymmetrische Energieaufteilung und eine Dipolverteilung für die sehr schnellen Elektronen bedeutet, daß das schnelle Elektron nicht nur die Energie des Pho-

tons, sondern auch seinen Drehimpuls absorbiert. Mit dieser Beobachtung ist verbunden, daß bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung, bei der das langsame Elektron einen Anisotropie-Parameter  $\beta \cong 0$  und das sehr schnelle Elektron den Wert  $\beta \cong 2$  hat, kein Drehimpulsaustausch zwischen den beiden Elektronen stattfindet.

Da aber für eine Doppelionisation entweder die Anfangs- oder die Endzustandskorrelation verantwortlich sein muß und andererseits die Beobachtung bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung zeigt, daß ein Drehimpulsaustausch zwischen den beiden Elektronen und somit die Endzustandskorrelation unwahrscheinlich ist, liegt es nahe, daß für extrem asymmetrische Energieaufteilung der Shake-off als dominanter Doppelionisationsmechanismus vorherrschen muß. Für eine detaillierter Studie werden deshalb die Winkelverteilungen für unterschiedliche Energieaufteilungen betrachtet.

## 6.2 Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts mit linear polarisiertem Licht

Die Abbildungen 6.2 bis 6.4 zeigen die Abhängigkeit des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts von der Energieaufteilung. Es werden vier verschiedene Energieaufteilungen exemplarisch dargestellt:  $1,5 \text{ eV} \leftrightarrow 448,5 \text{ eV}$ ;  $10 \text{ eV} \leftrightarrow 440 \text{ eV}$ ;  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  und  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$ . Der Winkel des festgehaltenen Elektrons zum Polarisationsvektor beträgt  $\vartheta_1 = 0^\circ, 45^\circ$  und  $90^\circ$ .

Abbildung 6.2 zeigt die Winkelverteilung, bei der das festgehaltene Elektron senkrecht auf dem Polarisationsvektor steht. Nach Auswahlregel A findet man in allen Winkelverteilungen eine Zwei-Lobe-Struktur. Lage und Breite der Lobes variieren mit der Energieaufteilung: Bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung sind die beiden Lobes runder als bei einer Energieaufteilung von  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  oder  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$ . Es ist deutlich zu erkennen, wie die Magnitude des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts von der Energieaufteilung abhängt. Da für das sehr schnelle Elektron  $\beta \cong 2$  gilt, ist der Wirkungsquerschnitt für die Winkelverteilung des  $1,5 \text{ eV}$  Elektrons besonders klein.

Da für  $\vartheta_1 = 90^\circ$  die Auswahlregel A kaum Freiheiten in der Winkelverteilung zuläßt, finden sich die großen Unterschiede in den Winkelverteilungen für *den* Fall, daß der Impulsvektor des festgehaltenen Elektrons parallel zum Polarisationsvektor liegt. Wie bei  $100 \text{ eV}$  über der Schwelle hängt die Winkelverteilung auch bei  $450 \text{ eV}$  stark von der Energieaufteilung ab.

Abbildung 6.3 zeigt die Winkelverteilung, bei der das festgehaltene Elektron parallel zum Polarisationsvektor liegt. Zuerst wird die Verteilung des schnellen Elektrons herausgegriffen: Bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung findet man eine typische Dipolverteilung vor, die zur vertikalen Achse nicht symmetrisch ist. Der Lobe im zweiten und dritten Quadranten ist stärker ausgeprägt als der im ersten und vierten Quadranten. Das schnelle Elektron wird also vorwiegend entgegengesetzt zum langsamen Elektron emit-

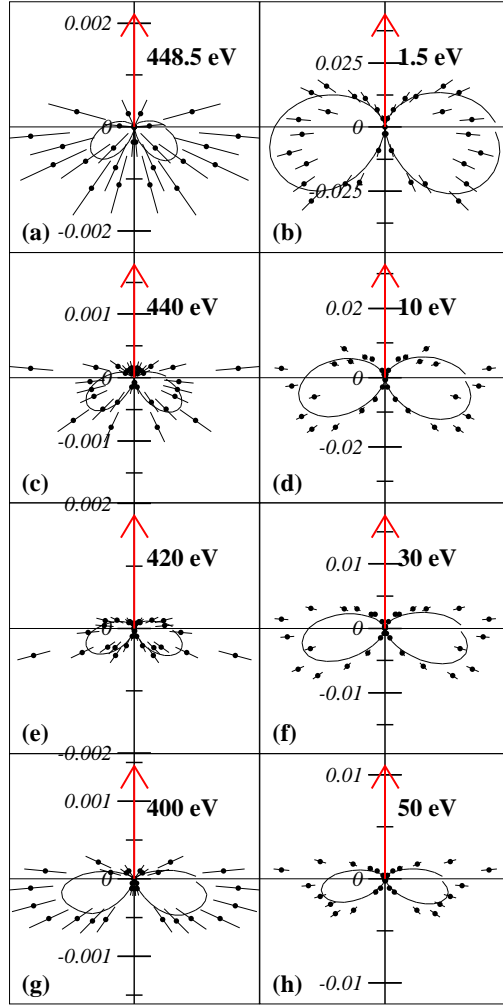


Abbildung 6.2: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt 450 eV über der Schwelle in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . In allen Abbildungen ist der Polarisationsvektor horizontal. Die Richtung und die Energie eines der beiden Elektronen ist festgehalten. Dargestellt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons. Die Daten sind an der vertikalen Achse gespiegelt; d.h. die Daten im zweiten und dritten Quadranten sind gleich der Daten im ersten und vierten Quadranten. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Der Winkel des festgehaltenen Elektrons zur Polarisationsachse ist  $\vartheta_1 = (90 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron befindet sich mit  $\pm 25^\circ$  in der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist. (a)  $447 < E_1 < 450$  eV, (b)  $0 < E_1 < 3$  eV, (c)  $434 < E_1 < 446$  eV, (d)  $4 < E_1 < 16$  eV, (e)  $410 < E_1 < 430$  eV, (f)  $20 < E_1 < 40$  eV, (g)  $390 < E_1 < 410$  eV, (h)  $40 < E_1 < 60$  eV.

tiert.

Ist die Energie des langsamen Elektrons etwas höher, so treten zwar immer noch zwei Lobes parallel zum Polarisationsvektor auf, der Lobe im ersten und vierten Quadranten ist aber größer. Dies liegt am Verlauf der geraden und ungeraden Amplitude bei dieser Energieaufteilung: Da die parallele Emission durch  $4 |a_g(E_1, E_2, \vartheta_{12} = 0^\circ)|^2$ , die anti-parallele Emission jedoch durch  $4 |a_u(E_1, E_2, \vartheta_{12} = 180^\circ)|^2$  gegeben ist, ist das Quadrat

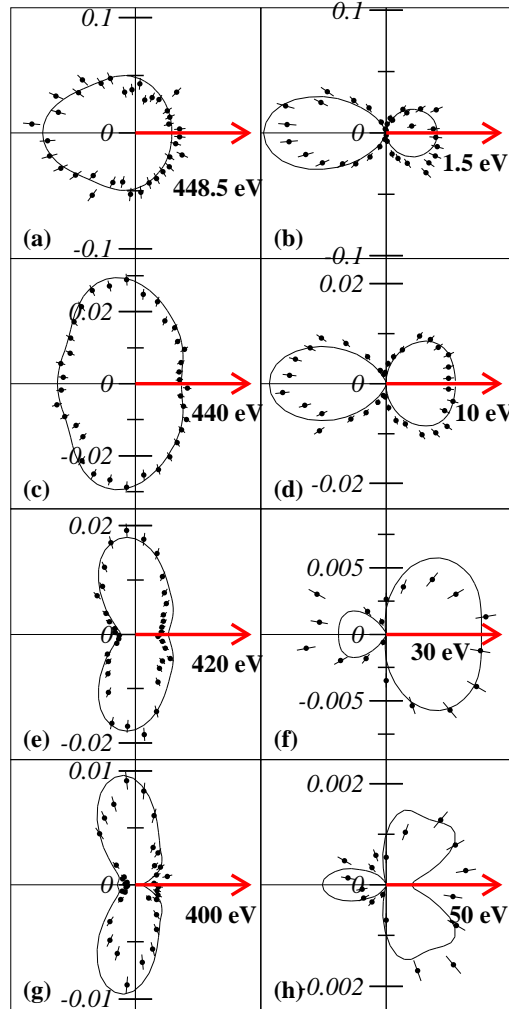


Abbildung 6.3: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation von Helium 450 eV über der Schwelle in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . In allen Abbildungen ist die Polarisationsachse horizontal. Die Richtung und die Energie von einem der beiden Elektronen ist festgehalten. Dargestellt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons, das sich mit  $\pm 20^\circ$  (a,b,c,d,e,f) und  $\pm 25^\circ$  (g,h) innerhalb der Ebene befindet. Energie-Integrationsgrenzen analog wie Abbildung 6.2. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Panels (a), (b), (e) und (f) sind aus Knapp *et al.* [106]. (a)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$ , (b)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$ , (c)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$ , (d)  $-30^\circ < \vartheta_1 < 30^\circ$ , (e)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$ , (f)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$ , (g)  $-30^\circ < \vartheta_1 < 30^\circ$ , (h)  $-25^\circ < \vartheta_1 < 25^\circ$

der geraden Amplitude für  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  größer als  $|a_u|^2$  für  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ , siehe Kapitel 6.6.

Für sehr langsame Elektronen findet sich eine nahezu isotrope Verteilung. Bei  $E_1 = 440$  eV tritt eine Verteilung ähnlich einer hochgestellten Ellipse auf. Bei höherer Energie des langsamen Elektrons findet sich bei  $E_2 = 30$  eV und  $E_1 = 50$  eV eine Zwei-Lobe-Struktur; diese beiden Lobes stehen senkrecht auf dem Polarisationsvektor; d.h., das langsame Elektron wird in einem engen Konus von  $90^\circ$  zum schnellen Elektron emittiert.

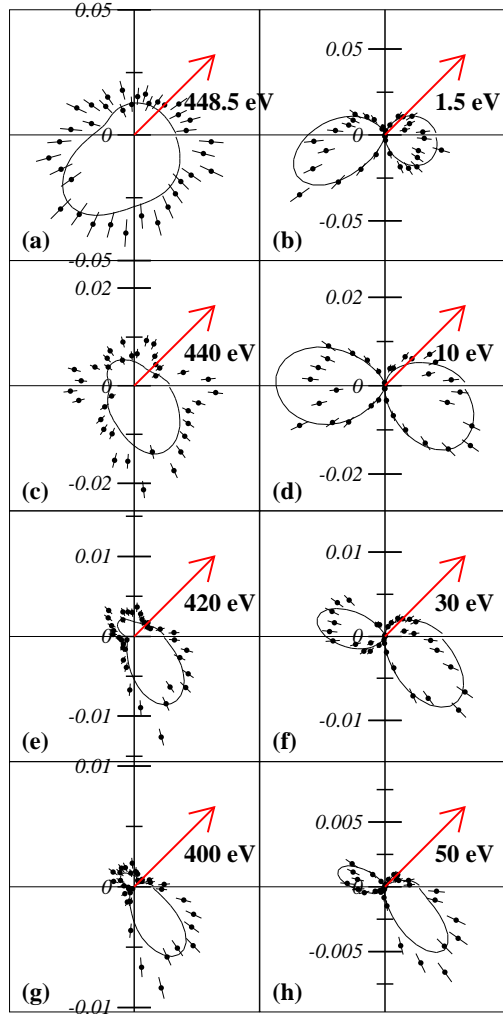


Abbildung 6.4: Wie in Abbildung 6.2; außer: In allen Abbildungen ist der Winkel des festgehaltenen Elektrons zur Polarisationsachse  $\vartheta_1 = (45 \pm 10)^\circ$ ; das komplementäre Elektron befindet sich mit  $\pm 25^\circ$  innerhalb der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltene Elektron aufgespannt ist.

Der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt für  $\vartheta_1 = 45^\circ$  (Abbildung 6.4) zeigt ein ähnliches Bild. Auch hier erfolgt die Verteilung des sehr schnellen Elektrons in einer Dipolstruktur, die fast parallel zum Polarisationsvektor ausgerichtet ist. Verringert sich die Energie des schnellen Elektrons, so ändert sich die Dipolstruktur, indem die Verteilung „kippt“. Die Verteilung des sehr langsamen Elektrons ist wie bei  $\vartheta_1 = 0^\circ$  isotrop, bzw. leicht rückwärts zum schnellen Elektron gerichtet. Bei Energien von 30 eV und 50 eV des langsamen Elektrons bildet sich wieder eine Zwei-Lobe-Struktur aus.

Diese Zwei-Lobe-Struktur für  $\vartheta_1 = 0^\circ$  und  $\vartheta_1 = 45^\circ$  ist nicht mit der Verteilung bei 100 eV über der Schwelle und gleicher Energieaufteilung vergleichbar. Bei 100 eV über der Schwelle und gleicher Energieaufteilung entsteht die Zwei-Lobe-Struktur aus der Auswahlregel C. Hier, bei 450 eV über der Schwelle, und einer Energieaufteilung von  $E_1/E_2 = 1/14$  für  $E_1 = 30$  eV sollten beide Amplituden einen wesentlichen Einfluß auf



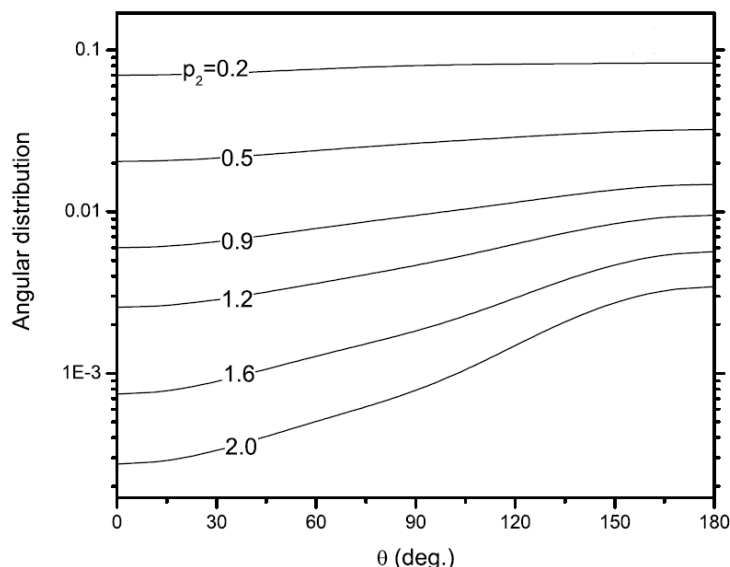


Abbildung 6.5: Winkelverteilung des Shake-off Elektrons nach einer Rechnung von [107]; variiert werden die Impulse des Shake-off-Elektrons. Das erste, schnelle Elektron ist mit einem Impuls von 6 a.u. entlang der Polarisationsachse festgehalten. Es werden die Winkelverteilungen des komplementären Elektrons dargestellt für den Fall, daß die Doppelionisation allein durch den Shake-off-Mechanismus erfolgt.

die gesamte Winkelverteilung haben. Beide Amplituden, das Quadrat der geraden und der ungeraden Amplitude sind für die Winkelverteilung verantwortlich. Da die Zwei-Lobe-Struktur nicht in den Auswahlregeln begründet liegt, müssen die dynamischen Parameter dafür verantwortlich sein.

### Signatur von Shake-off und TS1 in den Winkelverteilungen

Wie schon anhand der Energieaufteilung und des  $\beta$ -Parameters gezeigt wurde, tritt bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung kein Drehimpulsübertrag zwischen den Elektronen auf. Die Ionisation wird durch die Anfangskorrelation, also durch den Shake-off dominiert. Untermuert wird dies durch eine Rechnung von Shi und Lin [107]. Abbildung 6.5 zeigt diese Rechnung; dargestellt ist die Winkelverteilung eines Shake-off-Elektrons in Abhängigkeit von seinem Impuls in Relation zu dem in Richtung der Polarisationsachse festgehaltenen, schnellen Elektron: Sehr langsame Shake-off-Elektronen werden isotrop emittiert, während ein langsames Shake-off-Elektron mit etwas mehr Energie überwiegend entgegengesetzt zum sehr schnellen, festgehaltenen Elektron emittiert wird. Die Winkelverteilung des 1,5 eV Elektrons zeigt diese isotrope, leicht rückwärts zum schnellen Elektron gerichtete Winkelverteilung.

Diese Shake-off-Verteilungen sind nicht isotrop und spiegeln die Anteile von  $p^2$ - und  $d^2$ -Beiträgen zum Helium-Grundzustand wider. Der reine  $s^2$ -Anteil würde eine isotrope Shake-off-Verteilung zeigen.

Für das langsame Elektron bei 30 eV und 50 eV beträgt  $\beta \cong -0,5$  und für das schnel-

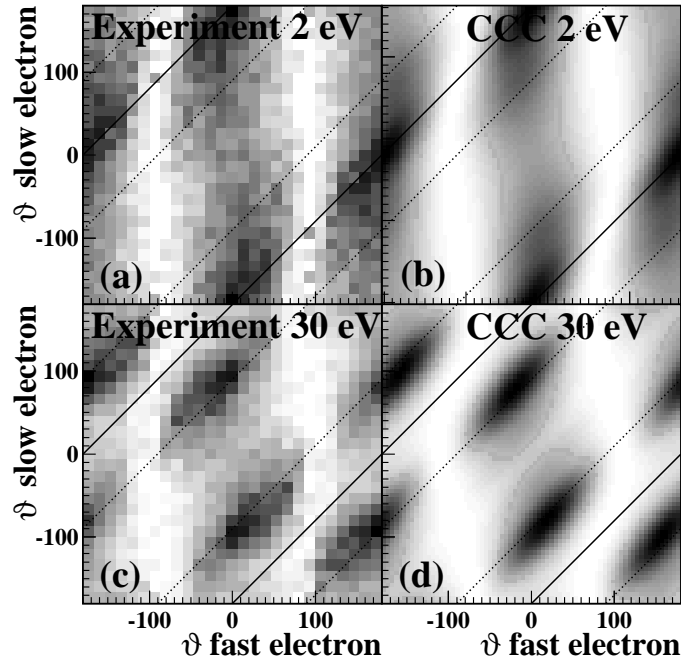


Abbildung 6.6: Übersicht über den vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitt bei einer Energie 450 eV über der Schwelle in koplanarer Geometrie [(a) und (c) Experiment, (b) und (d) CCC-Rechnung]. Energie-Integrationsgrenzen: (a) und (b)  $0 < E_2 < 3$  eV, (c) und (d)  $20 < E_2 < 40$  eV. Die horizontale Achse zeigt den Winkel  $\vartheta_1$  des schnellen Elektrons zum Polarisationsvektor, auf der vertikalen Achse ist der Winkel  $\vartheta_2$  des langsamen Elektrons aufgetragen. Die durchgezogene Linie kennzeichnet back-to-back Emission bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  (Shake-off), die gestrichelte Linie zeigt die Emission von zwei Elektronen unter einem Winkel von  $\vartheta_{12} = 90^\circ$ , wie es vom TS1 erwartet wird. Abbildung aus Knapp *et al.* [106].

le Elektron mit  $E_1 = 400$  eV und 420 eV ist  $\beta \cong 1,7$ . Es liegt nahe, einen Drehimpuls-austausch zwischen beiden Elektronen anzunehmen. Gleichzeitig finden wir sowohl bei  $\vartheta_1 = 0^\circ$  als auch bei  $45^\circ$  die Emission des langsamen Elektrons zum schnellen im Winkel von  $90^\circ$ . Bei einem Stoßsystem von zwei Teilchen mit gleicher Masse wird ein Winkel von  $90^\circ$  erwartet.

Hier wurden willkürlich zwei Winkel herausgegriffen, jedoch findet man für alle  $\vartheta_1$  (außer  $\vartheta_1=90^\circ$  wegen Auswahlregel A) eine Emission des langsamen Elektrons im Winkel von  $90^\circ$  zum schnellen gemäß Abbildung 6.6. Die Maxima bei den 1,5 eV Elektronen treten bei back-to-back Emission auf, die Maxima der 30 eV Elektronen bei einem Zwischenwinkel von  $90^\circ$ . Die Emission im Winkel von  $90^\circ$  wie auch die back-to-back Emission der sehr langsamen Elektronen hängt weitgehend nicht von der Lage der Polarisationsachse ab, was darauf hindeutet, daß hier die Dynamik der beiden Elektronen die entscheidende Rolle spielt.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß eine asymmetrische Energieaufteilung und ein  $\beta$  von fast 2 einen Zwei-Stufen-Prozeß nahelegen. Die isotrope, leicht rückwärts gerichtete Winkelverteilung des Elektrons zeigt, daß sehr langsame Elektronen durch den Shake-off ins Kontinuum gelangen, während etwas schnellere Elektronen einen (e,2e)-

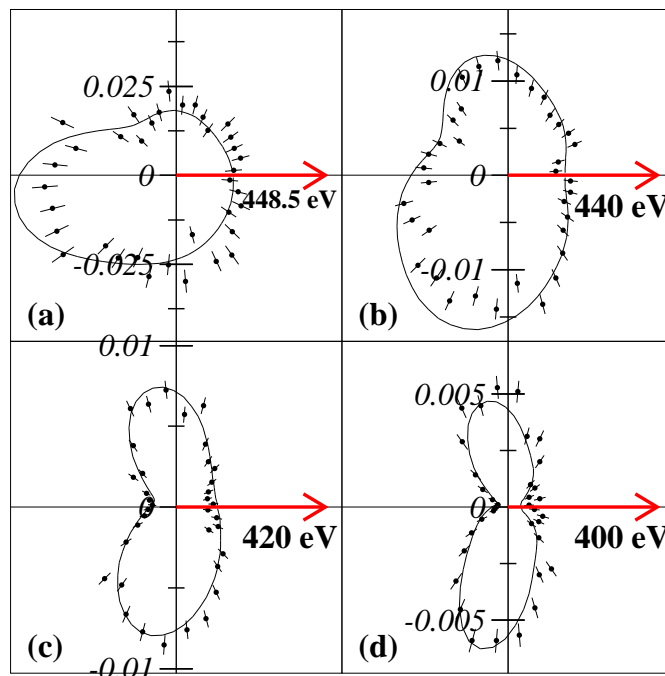


Abbildung 6.7: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt 450 eV über der Schwelle mit rechts zirkular polarisiertem Licht in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . Die beiden Elektronen befinden sich in einer Ebene senkrecht zur Lichtausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 20^\circ$ . Die Richtung und die Energie von einem der beiden Elektronen ist festgehalten. Dargestellt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Energie-Integrationsgrenzen: a)  $447 < E_1 < 450 \text{ eV}$ , b)  $434 < E_1 < 446 \text{ eV}$ , c)  $410 < E_1 < 430 \text{ eV}$ , d)  $390 < E_1 < 410 \text{ eV}$ .

Stoß benötigen. Diese Dynamik ist auch im Verlauf der geraden und der ungeraden Amplitude zu erkennen, siehe Kapitel 6.6.

### 6.3 Darstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts mit zirkular polarisiertem Licht

Für einen besseren Vergleich mit der Theorie wird der vollständig differentielle Wirkungsquerschnitt mit zirkular polarisiertem Licht auf absoluter Skala in der üblichen Polarwinkel-Darstellung gezeigt (Abbildung 6.7). Um einen größeren Statistikumfang zu bekommen, sind alle Events der beiden Experimente mit links und rechts zirkular polarisiertem Licht nach Gleichung 2.6 addiert worden. Die beiden Elektronen befinden sich in einer Ebene senkrecht zur Lichtausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 20^\circ$ . Abbildung 6.7 zeigt die Winkelverteilung des komplementären Elektrons unter Berücksichtigung des festgehaltenen Elektrons. Die durchgezogene Linie stellt das Ergebnis einer CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform dar. Die Abbildung zeigt die Abhängigkeit des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts von der Energieaufteilung. Es wurden die gleichen Energieaufteilungen gewählt wie bei den Winkelverteilungen mit linear polari-

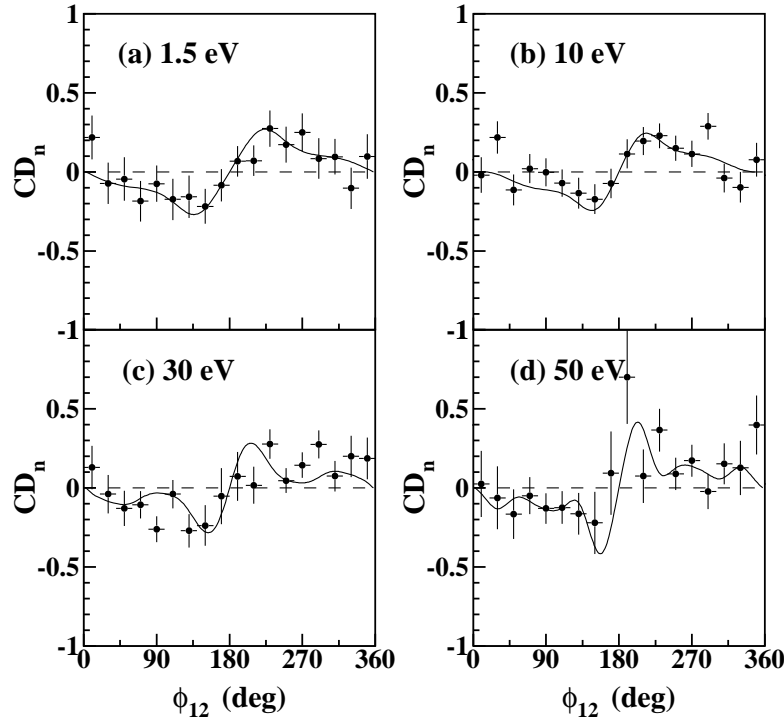


Abbildung 6.8:  $CD_n$  450 eV über der Schwelle. Die beiden Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Lichtausbreitung  $x$ :  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 20^\circ$ . Energie-Integrationsgrenzen wie in Abbildung 6.7.

siertem Licht.

Auf den ersten Blick sieht man, daß die Winkelverteilung nicht symmetrisch zur horizontalen Achse ist. Somit ist ein kleiner Zirkularer Dichroismus vorhanden. Die Winkelverteilung des sehr langsamen Elektrons besteht nur aus einem einzigen Lobe. Bei einer Energieaufteilung von 50 eV  $\leftrightarrow$  400 eV ist die Bildung von zwei Lobes erkennbar.

Im Gegensatz zur Winkelverteilung bei 100 eV über der Schwelle sind die beiden Lobes hier nicht ein Resultat der Auswahlregel C, sondern das Ergebnis des TS1 [23, 24], der der dominierende Mechanismus bei diesen Energieaufteilungen ist [106].

Es stellt sich nun die Frage, wie groß der quantitative Effekt ist, da der Zirkulare Dichroismus nach J. Berakdar mit  $\sqrt{1/E_{exc}}$  abnimmt [62].

## 6.4 Zirkularer Dichroismus

Die Magnitude des Zirkularen Dichroismus ist bei 450 eV (Abbildung 6.8) wesentlich kleiner als bei 100 eV über der Schwelle: Während ein maximaler Zirkularer Dichroismus  $CD_{n,max} \cong 0,7$  für 100 eV zu finden ist, beträgt  $CD_{n,max}$  nur etwa 0,2 für eine Energieaufteilung von 1,5 eV  $\leftrightarrow$  448,5 eV und 10 eV  $\leftrightarrow$  440 eV bei 450 eV über der Schwelle.

Auch hier, bei 450 eV, ist die Tendenz für eine Verschiebung der  $\varphi_{12}$ -Position des Extremums in Abhängigkeit von der Energieaufteilung zu beobachten.

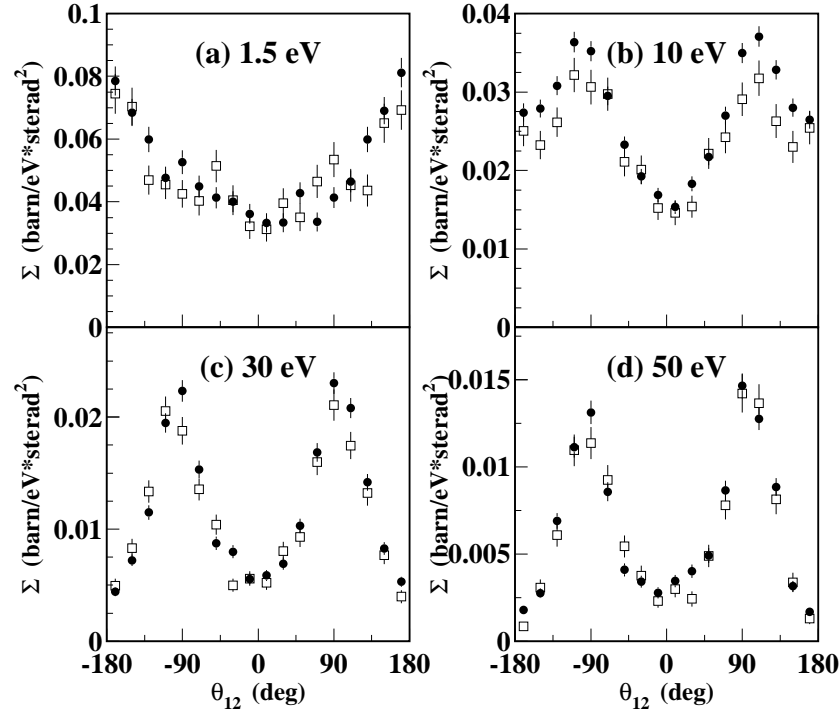


Abbildung 6.9: Konsistenz-Überprüfung. Volle Kreise: linear polarisiertes Licht  $5DCS(\varepsilon_x)+5DCS(\varepsilon_y)$ . Offene Quadrate: zirkular polarisiertes Licht  $FDCS(\sigma^+)+FDCS(\sigma^-)$ . Zirkular polarisiertes Licht: Die beiden Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Strahlausbreitung:  $\vartheta_{x_1}=\vartheta_{x_2}=90^\circ\pm 20^\circ$ . Energie-Integrationsgrenzen: a)  $447 < E_1 < 450$  eV, b)  $434 < E_1 < 446$  eV, c)  $410 < E_1 < 430$  eV, d)  $390 < E_1 < 410$  eV. Linear polarisiertes Licht  $\varepsilon_x$ , Energie- und Winkelintegration wie in Abbildung 6.3 (a), (c), (e) und (g). Linear polarisiertes Licht  $\varepsilon_y$ , Energie- und Winkelintegration wie in Abbildung 6.2 (a), (c), (e) und (g). Der Konsistenz-Check zeigt keine Hinweise auf systematische Fehler.

Die CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform stimmt mit den experimentellen Daten bei einer Energieaufteilung von  $1,5 \text{ eV} \leftrightarrow 448,5 \text{ eV}$  und  $10 \text{ eV} \leftrightarrow 440 \text{ eV}$  gut überein. Für eine Energieaufteilung von  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  und  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$  ist es schwierig, eine Aussage über den Zirkularen Dichroismus zu treffen, da nur wenige Events gemessen werden konnten und die Punktsymmetrie nur annähernd gewährleistet ist. Deshalb kann für die Energieaufteilungen  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  und  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$  keinerlei Aussagen bezüglich der Übereinstimmung von Theorie und Experiment getroffen werden. Die Rechnung läßt mit zunehmender Symmetrie der Energieaufteilung ein Ansteigen von  $CD_{n,max} \cong 0,28$  für  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  bis  $CD_{n,max} \cong 0,41$  für  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$  erwarten. Ist dies der Fall, so könnte das mit der Dominanz des TS1 bei eher symmetrischen Energieaufteilungen erklärt werden. Nach Keller [22] ist der Zirkulare Dichroismus mit dem TS1 korreliert.

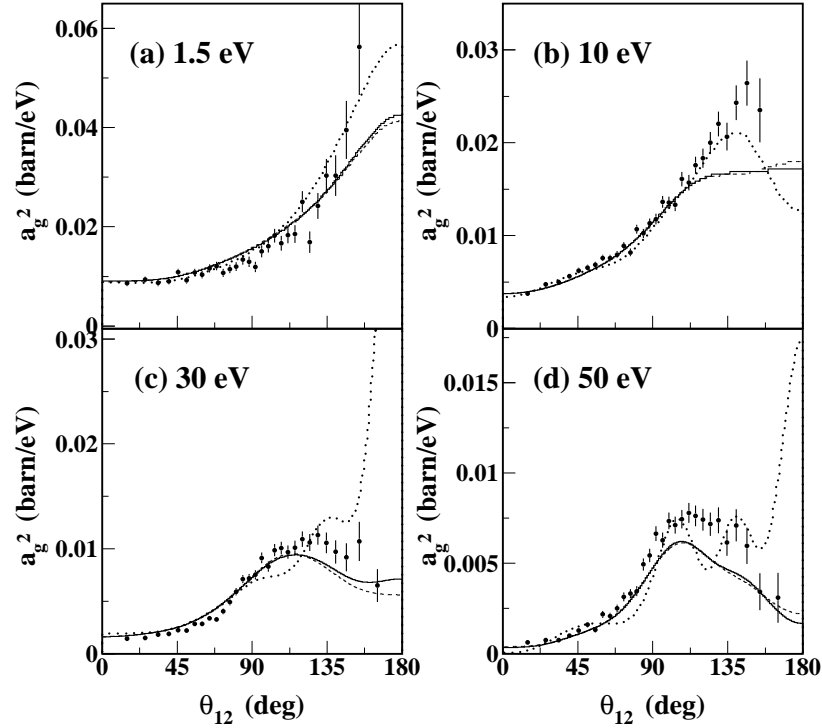


Abbildung 6.10: Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV auf absoluter Skala. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen von einem der beiden Elektronen: a)  $0 < E_e < 3$  eV, b)  $5 < E_e < 15$  eV, c)  $25 < E_e < 35$  eV, d)  $45 < E_e < 55$  eV.

## 6.5 Konsistenz-Überprüfung

Wie bei den Ergebnissen von 100 eV über der Schwelle ist es auch hier möglich, eine Konsistenz-Überprüfung durchzuführen. Abbildung 6.9 zeigt diese Konsistenz-Überprüfung. Es findet sich kein Hinweis auf systematische Fehler.

## 6.6 Amplituden und deren Relativphase

Wie anhand der Winkelverteilungen bereits erläutert wurde, dominiert bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung der Shake-off, während langsame Elektronen mit höherer Energie ( $E_{compl} \geq 30$  eV) einen (e,2e)-Stoß brauchen, um ins Kontinuum zu gelangen. Für eine Untermauerung dieses Sachverhaltes müßte eine große Änderung der dynamischen Parameter in Abhängigkeit von der Energieaufteilung gefunden werden.

Abbildung 6.10 zeigt das Betragsquadrat  $|a_g|^2$ . Bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung findet man eine qualitativ ähnliche Verteilung wie bei 100 eV über der Schwelle mit einem Maximum bei einem Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  von  $180^\circ$ . Das Minimum ist weiterhin bei  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  zu finden. Allerdings ist das Verhältnis des Maximums bei  $\vartheta_{12}=180^\circ$

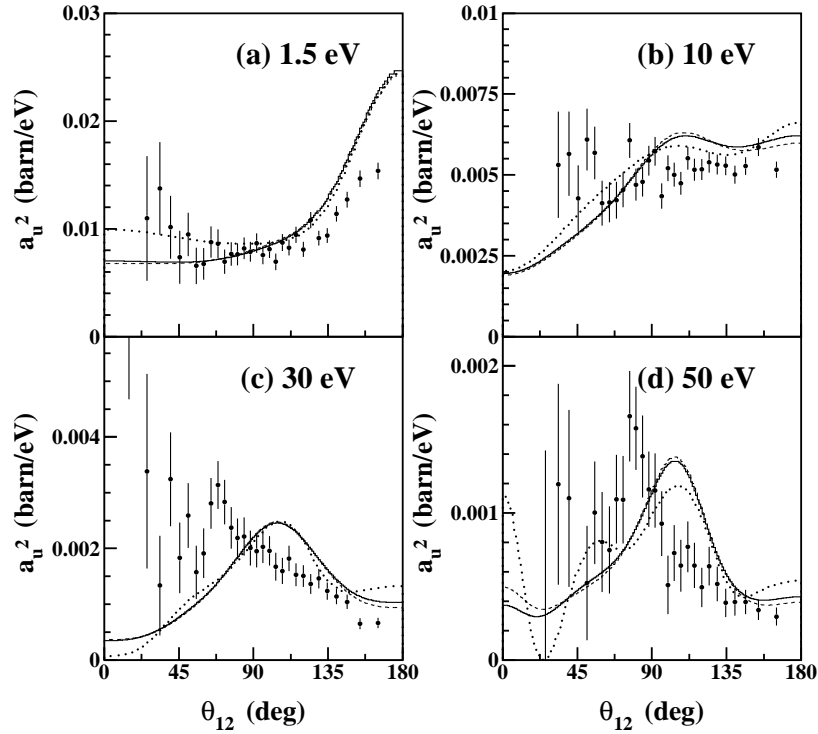


Abbildung 6.11: Quadrat der ungeraden Amplitude  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV auf absoluter Skala. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen wie in Abbildung 6.10.

zum Minimum bei  $\vartheta_{12}=0^\circ$  nicht so groß wie bei 100 eV über der Schwelle.

$|a_g|^2$  bei  $E_2 = 30$  eV und bei 50 eV zeigen einen Verlauf, der sich von  $|a_g|^2$  bei  $E_2 = 1,5$  eV stark unterscheidet. Das Maximum ist nicht mehr bei  $\vartheta_{12}=180^\circ$  zu finden, sondern bei etwa  $110^\circ$ . Zu beiden Seiten des Peaks fällt  $|a_g|^2$  ab. Dabei ist der Wert von  $|a_g|^2$  bei  $\vartheta_{12}=0^\circ$  etwa gleich groß wie bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ .

Der Verlauf von  $|a_g|^2$  bei 10 eV zeigt dabei eine „Übergangsstruktur“, die qualitativ zwischen der bei  $E_2 = 1,5$  eV und der bei  $E_2 = 30$  eV liegt. Bei 10 eV steigt  $|a_g|^2$  erst an und geht dann in ein Plateau über. Der Verlauf von  $|a_g|^2$  zeigt deutlich, daß ein Wechsel in der Dynamik der beiden Elektronen stattfindet.

Dieser Wechsel spiegelt sich auch im Quadrat der ungeraden Amplitude  $|a_u|^2$  (Abbildung 6.11) wieder. Bei  $E_2 = 1,5$  eV zeigt  $|a_u|^2$  wie  $|a_g|^2$  ein Maximum bei  $180^\circ$ . Geht man zu Energien von  $E_2 = 30$  eV und 50 eV, ist auch hier, wie schon bei  $|a_g|^2$ , ein Maximum bei etwa  $90^\circ$  zu erkennen.

### Signatur der beiden Mechanismen Shake-off und TS1 im Verlauf vom Quadrat der geraden $|a_g|^2$ und der ungeraden Amplitude $|a_u|^2$

Beide Amplituden zeigen eine deutliche Änderung der Elektronen-Dynamik: Während das Maximum bei  $110^\circ$  den (e,2e)-Stoß deutlich erkennen läßt (dabei ist  $90^\circ$  als Grenz-

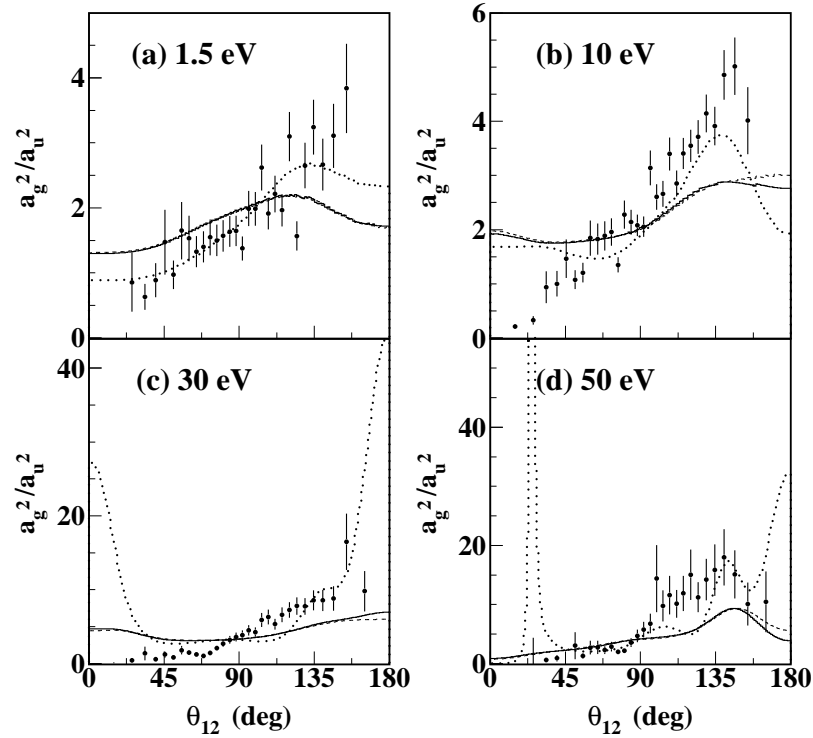


Abbildung 6.12: Verhältnis von  $|a_g|^2$  zu  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen wie in Abbildung 6.10.

fall der klassischen Mechanik zu werten), repräsentiert der Verlauf bei  $E_2 = 1,5$  eV den Shake-off, bei dem die Elektronen isotrop bzw. rückwärts gerichtet zum schnellen Elektron emittiert werden.

Die experimentellen Daten zeigen recht gute Übereinstimmung mit der CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Vergleichend werden auch die Rechnungen in Beschleunigungs- und Längenform angegeben. Hier zeigen sich, anders als bei  $E_{exc} = 100$  eV, deutliche Abweichungen zwischen den einzelnen Rechnungen.

Das Verhältnis vom Quadrat der geraden  $|a_g|^2$  zur ungeraden Amplitude  $|a_u|^2$  (Abbildung 6.12) zeigt, daß der Einfluß der ungeraden Amplitude bei dieser hohen Photon-Energie wesentlich größer ist als bei 100 eV über der Schwelle. Wie im Fall  $E_{exc} = 100$  eV wächst auch hier der Einfluß der ungeraden Amplitude relativ zur geraden mit zunehmend asymmetrischer Energieaufteilung.

Bei der Betrachtung der Amplituden wurden für die Dynamik der beiden Elektronen allein die Quadrate der Amplituden herangezogen, obwohl nach Gleichung 2.8 die Phase zwischen beiden Amplituden auch eine Rolle spielt. Die Phase (Abbildung 6.13) ist für die unterschiedliche Energieaufteilungen nahezu unabhängig vom Zwischenwinkel. Wie schon bei 100 eV über der Schwelle liegt die Phase bei  $\Phi \cong 180^\circ$ ; es besteht die Tendenz, daß die Phase bei kleinen Zwischenwinkeln ( $\Phi \cong 190^\circ$  bei  $\vartheta_{12} = 0^\circ$ ) größer ist als bei großen Zwischenwinkeln ( $\Phi \cong 160^\circ$  bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ ).



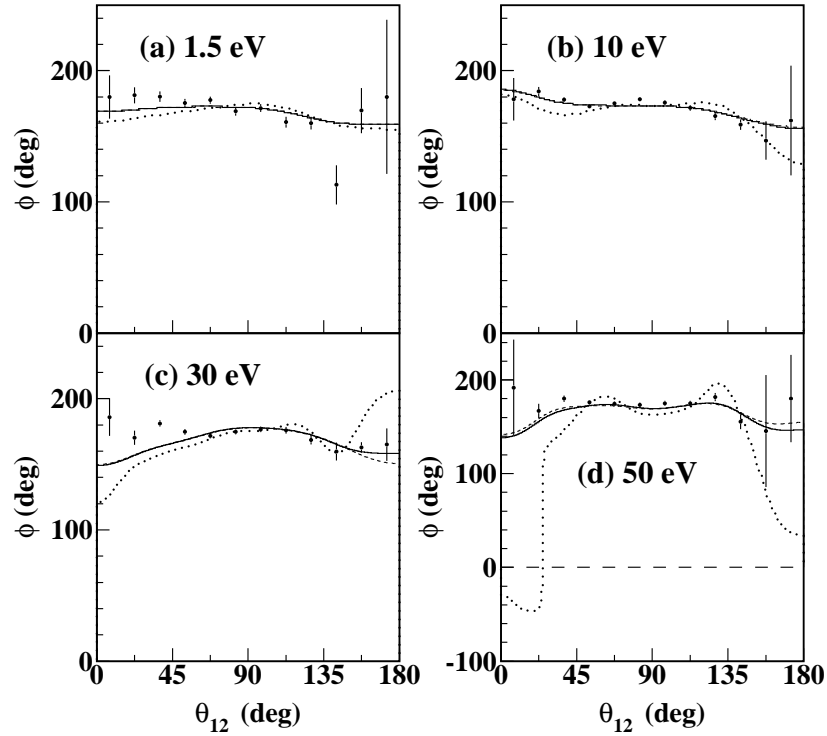


Abbildung 6.13: Phase zwischen  $a_g$  und  $a_u$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Es wurde der gesamte COLTRIMS-Datensatz für linear und zirkular polarisiertes Licht verwendet. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform, die gepunktete in Längen- und die gestrichelte Linie in Beschleunigungsform. Energie-Integrationsgrenzen von einem der beiden Elektronen für linear und zirkular polarisiertes Licht: a)  $0 < E_e < 3$  eV, b)  $5 < E_e < 15$  eV, c)  $25 < E_e < 35$  eV, d)  $45 < E_e < 55$  eV. Zirkular polarisiertes Licht: Beide Elektronen befinden sich in einem Winkel von  $\vartheta_{x_1} = \vartheta_{x_2} = 90^\circ \pm 25^\circ$  zur Strahlausbreitung  $x$ .

### Vergleich der experimentellen Daten mit den CCC-Rechnungen

Die Daten werden nun mit den CCC-Rechnungen verglichen, wobei alle drei Formen dargestellt sind. Die CCC-Rechnungen bei 1,5 eV und bei 10 eV sind dabei  $20\ell_{max}6$ -Rechnungen, während die für 30 eV und 50 eV  $20\ell_{max}8$ -Rechnungen sind.  $\ell$  ist der Drehimpuls des langsameren Elektrons, das sich in den sog. Pseudo-Zuständen befindet. Für jedes  $0 \leq \ell \leq \ell_{max}$  werden  $20 - \ell$  Zustände genommen. Die Summe der Zustände (die Größe der Laguerre-Basis) berechnet sich zu  $\sum_{\ell=0}^{\ell_{max}} 20 - \ell = \sum_{\ell=0}^6 20 - \ell = 119$  für die  $20\ell_{max}6$ -Rechnung und  $\sum_{\ell=0}^8 20 - \ell = 144$  für die  $20\ell_{max}8$ -Rechnung.

Daß für eine Energieaufteilung von  $30 \text{ eV} \leftrightarrow 420 \text{ eV}$  und  $50 \text{ eV} \leftrightarrow 400 \text{ eV}$  Drehimpulse bis  $\ell = 8$  hinzugenommen wurden, liegt an folgendem [105]: Für eine Energie von 100 eV über der Schwelle ist es sehr leicht, Konvergenz zu erreichen. Bei 450 eV kommt die Limitierung der Konvergenz vom Drehimpuls des langsamen Elektrons. Je höher die Energie des langsamen Elektrons ist, desto mehr Drehimpulse müssen hinzugenommen werden. Bei einer Energie von 1,5 eV und 10 eV des langsamen Elektrons reicht die Anzahl 6 der Drehimpulse. Jedoch müssen bei einer Energie von 30 eV oder

50 eV bis zu  $\ell_{max} = 8$  Drehimpulse hinzugenommen werden, um Konvergenz zu erreichen. Ist die Konvergenz nicht gewährleistet, so ist Gleichung 2.14 nicht erfüllt. Durch die Hinzunahme der Drehimpulse vergrößert sich die Anzahl der Zustände von 119 auf 144 [105].

Anders als bei 100 eV über der Schwelle, wo alle drei Formen recht gut übereingestimmt haben, zeigen sich hier zwischen den drei verschiedenen Formen recht große Abweichungen. Besonders die Rechnung in Längenform zeigt gegenüber den anderen beiden große Abweichungen. Die Rechnung in Längenform zeigt insbesondere für eine Energieaufteilung von 30 eV  $\leftrightarrow$  420 eV und 50 eV  $\leftrightarrow$  400 eV starke Schwankungen.

Die experimentellen Daten zeigen wieder recht gute Übereinstimmung mit der CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform.

Zur Vollständigkeit werden im Kapitel D (Anhang) die experimentellen Daten mit einer CCC-Shake-off-only-Rechnung verglichen.

# Kapitel 7

## Zusammenfassung und Ausblick

Die Messung der vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte der Photodoppelionisation von Helium ermöglicht die Elektronenkorrelation im Detail zu studieren. Unter Elektronenkorrelation versteht man die Effekte, die im Rahmen des Modells der unabhängigen Teilchen nicht erfaßt werden. Bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit lagen nur Ergebnisse zu Photodoppelionisations-Experimenten bis zu einer Überschußenergie von  $E_{exc} = 60$  eV vor. Mit den Messungen bei  $E_{exc} = 100$  eV und  $E_{exc} = 450$  eV mit linear sowie links und rechts zirkular polarisiertem Licht konnte im Rahmen dieser Arbeit die Elektronenkorrelation im Bereich hoher Energie (im Vergleich zur Bindungsenergie des Systems von 79 eV) untersucht werden. Dadurch gelingt es, die Mechanismen, die zur Doppelionisation durch Absorption eines einzelnen Photons führen, experimentell sichtbar zu machen. Bei niedrigen Energien ist der Einfluß der Mechanismen, die zu einer Doppelionisation führen, durch die langreichweitige Elektron-Elektron-Abstoßung überdeckt.

Bei der Messung kam die COLTRIMS-Technik<sup>1</sup> zum Einsatz: Der Photonen-Strahl wird in einem Überschall-Heliumjet fokussiert. Elektronen mit einer Energie von maximal 60 eV werden durch ein elektrisches und magnetisches Feld im vollen Raumwinkel von  $4\pi$  auf einen großen ortssensitiven Channelplate-Delayline-Detektor abgebildet. Das elektrische Feld projiziert die Rückstoßionen auf einen zweiten ortssensitiven Detektor. Aus Flugzeit und Auftreffort lassen sich Ladungszustand und Impuls der Teilchen ermitteln. Der Impuls des schnellen, nicht detektierten Elektrons läßt sich aus dem gemessenen Impuls des langsamen Elektrons und des Rückstoßions mittels Impulserhaltung berechnen. Aus den einzelnen dreidimensionalen Impulsvektoren ergeben sich die Energien sowie die Polar- und Azimutalwinkel der Teilchen. Die Auftrefforte und -zeiten werden dabei Event für Event gespeichert. Bei sechs gemessenen Impulskomponenten<sup>2</sup> liegt ein einfach überbestimmtes Gleichungssystem vor, so daß die gemessenen Daten auf Energie-

---

<sup>1</sup>COLTRIMS steht für Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy = Rückstoßionen-Impuls-Spektroskopie

<sup>2</sup>Für die kinematisch vollständige Information ist die Messung von lediglich fünf Impulskomponenten nötig.

erhaltung überprüft werden können.

Die Experimente wurden am Strahlrohr 4.0.2 der Advanced Light Source des Lawrence Berkeley National Laboratory in Berkeley, USA, durchgeführt. Da bei dieser Messung alle Elektronen bis zu 60 eV im vollen Raumwinkel detektiert werden konnten, konnte für 450 eV ein Teil und für 100 eV sogar der gesamte Phasenraum des Endzustandes der Photodoppelionisation von Helium gemessen werden.

Die Messung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts bei 100 eV und 450 eV über der Doppelionisationsschwelle hat folgendes gezeigt.

### Photodoppelionisation 100 eV über der Doppelionisationsschwelle

Der gegen die Energie eines Elektrons aufgetragene Wirkungsquerschnitt zeigt die Form einer Wanne; d.h. die Überschußenergie wird *vorwiegend asymmetrisch* auf die beiden Elektronen aufgeteilt. Dies steht *im Gegensatz* zu den einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnitten nahe an der Schwelle, bei der die *symmetrische* Energieaufteilung dominiert.

Für sehr langsame Elektronen ist der Anisotropie-Parameter  $\beta = 0$  und für sehr schnelle Elektronen  $\beta = 1,3$ . *Langsame* Elektronen werden also *isotrop*, ein großer Anteil der *schnellen* Elektronen wird *entlang der Polarisationsachse* emittiert.

Die beiden Elektronen werden aufgrund ihrer Abstoßung hauptsächlich in entgegengesetzte Hemisphären emittiert. Dabei zeigen die Winkelverteilungen in koplanarer Geometrie die Erfüllung der in Kapitel 2.2.3 aufgelisteten Auswahlregeln.

Die Darstellung der Elektronenimpulse in Jacobi-Koordinaten zeigt, daß der Relativimpuls  $\vec{p}_-$  der beiden Elektronen (also der Aufbruch des korrelierten Elektronen-Paares) und die Bewegung des Heliumkerns  $\vec{p}_+$  *parallel zur Polarisationsachse* erfolgen. Da sich die Photodoppelionisation innerhalb des Gültigkeitsbereiches der Wannier-Näherung durch einen Elektronenaufbruch *senkrecht* zur Oszillation des Kerns *und senkrecht* zur Polarisationsachse auszeichnet, liegt der Drei-Körper-Coulomb-Aufbruch für 100 eV über der Schwelle *nicht* mehr im Gültigkeitsbereich der Wannier-Näherung. Daß bei dieser Energie der Aufbruch des korrelierten Elektronen-Paares und die Bewegung des Ions parallel zur Polarisation erfolgen können, ohne daß eine Einfachionisation eintritt, liegt an den hohen Geschwindigkeitsdifferenzen der Elektronen.

Die Messungen mit zirkular polarisiertem Licht zeigen einen recht hohen Zirkularen Dichroismus. Der Zirkulare Dichroismus ist ein Maß für die Chiralität, die bei der Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht auftreten kann. Das Extremum des normierten Zirkularen Dichroismus weist für verschiedene Energieaufteilungen weitgehend den gleichen Maximalwert von  $CD_{n,max} \cong 0,7$  auf. Die  $\varphi_{12}$ -Position des Extremums hängt von der Energieaufteilung ab: Die Extrema entfernen sich mit zunehmender asymmetrischer Energieaufteilung von  $\varphi_{12} = 180^\circ$ , wodurch die Steigung des Nulldurchgangs bei dem Zwischenwinkel  $\varphi_{12}$  von  $180^\circ$  größer wird.

Von Huetz *et al.* und Malegat *et al.* wurde eine Parametrisierung vorgeschlagen, die

erlaubt, die Dynamik der Doppelionisation im Detail zu studieren. In dieser Parametrisierung wird die Doppelionisation unter Ausnutzung verschiedener Symmetrien in einen geometrischen Teil (der durch die Eigenschaften des Photons gegeben ist) und in einen dynamischen Teil (ausgedrückt durch das Quadrat der geraden und der ungeraden Amplitude und der Relativphase zwischen beiden Amplituden) separiert. Der Verlauf der Quadrate der geraden  $|a_g|^2$  und der ungeraden Amplituden  $|a_u|^2$  zeigt für unterschiedliche Energieaufteilungen ein *Maximum* bei einem Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  von  $180^\circ$  und ein *Minimum* bei  $0^\circ$ . Das Maximum bei einem Zwischenwinkel von  $180^\circ$  läßt sich mit der gegenseitigen Abstoßung der Elektronen erklären. Im Falle gleicher Energieaufteilung  $E_1 = E_2$  ist der Wert vom Quadrat der geraden Amplitude  $|a_g|^2$  an der Stelle  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  verschwindend klein. Dies stellt die Gültigkeit der kinematischen Auswahlregel für gleiche Energieaufteilung und parallele Emission der beiden Elektronen dar: Beide Elektronen können wegen der Elektron-Elektron-Abstoßung nicht in die gleiche Richtung emittiert werden. Diese kinematische Auswahlregel ist für stark asymmetrische Energieaufteilungen nicht mehr gültig: Der Wert von  $|a_g|^2$  an der Stelle  $\vartheta_{12} = 0^\circ$  ist ungleich Null; die Geschwindigkeitsdifferenzen zwischen den beiden Elektronen ist groß genug, daß sie mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit in die gleiche Richtung emittiert werden.

Die *Phase* zwischen beiden Amplituden liegt bei  $\Phi \cong 180^\circ$  und ist *weitgehend konstant*: Der Verlauf der Phase zeigt, daß  $\Phi$  weitgehend unabhängig sowohl vom Zwischenwinkel  $\vartheta_{12}$  als auch von der Energieaufteilung ist. Tendenziell ist die Phase bei kleinen Zwischenwinkeln  $\vartheta_{12}$  größer.

Der Vergleich der experimentellen Daten mit einer convergent-close-coupling (CCC)-Rechnung in Geschwindigkeitsform zeigt gute Übereinstimmung.

### Photodoppelionisation 450 eV über der Doppelionisationsschwelle

Der Verlauf des einfachdifferentiellen Wirkungsquerschnittes für 450 eV zeigt eine *weitaus stärkere asymmetrische* Energieaufteilung als bei 100 eV. D.h. in den überwiegenden Fällen findet man ein sehr schnelles und entsprechend ein dazugehöriges sehr langsames Elektron.

Auch der Anisotropie-Parameter nimmt unterschiedliche Werte an: wie bei 100 eV werden auch bei 450 eV die *langsamen* Elektronen *isotrop* ( $\beta = 0$ ) emittiert. Die *schnellen* Elektronen, die bei 100 eV einen Anisotropie-Parameter  $\beta \cong 1,3$  besitzen, weisen bei 450 eV über der Schwelle eine *Dipolverteilung* ( $\beta \cong 2$ ) auf.

Eine extrem asymmetrische Energieaufteilung und ein Anisotropie-Parameter nahe  $\beta \cong 2$  für die sehr schnellen Elektronen ermöglichen eine Unterscheidung der beiden Elektronen in ein „erstes“, schnelles und in ein „zweites“, langsames Elektron. Das „erste“ Elektron absorbiert die Energie und den Drehimpuls des Photons, das „zweite“ Elektron gelangt dann durch den Shake-off oder den Two-Step-One (TS1)-Mechanismus ins Kontinuum. Sowohl die Winkelverteilungen als auch die Amplituden geben einen Hinweis darauf, daß bei Emission eines sehr langsamen Elektrons ( $E_1 \leq 3$  eV) der Shake-off

als Doppelionisationsmechanismus dominiert, während Elektronen mit einer Energie von 30 eV einen (e,2e)-Stoß brauchen, um ins Kontinuum zu gelangen.

Die Form der Winkelverteilung des *sehr langsamen* Elektrons ist *isotrop und leicht rückwärts gerichtet*. Diese Verteilung entspricht dem Shake-off. Die Winkelverteilung des 30 eV Elektrons erfolgt statt dessen *in einem engen Konus von  $90^\circ$* , was mit dem Ablauf des TS1 im Einklang steht, bei dem die beiden Elektronen einen (e,2e)-Stoß ausführen. Um auszuschließen, daß es sich bei diesen Verteilungen um einen unerwarteten Einfluß der geometrischen Faktoren handelt, wird der Verlauf der geraden und ungeraden Amplitude untersucht. Wenn die Vermutung der Dominanz von Shake-off und TS1 in Abhängigkeit von der Energieaufteilung richtig ist, muß diese Änderung der Dynamik im Verlauf der Quadrate der geraden und der ungeraden Amplituden zu erkennen sein.

Die *Änderung der dynamischen Parameter* in Abhängigkeit von der Energieaufteilung ist deutlich erkennbar. Bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung zeigen die Quadrate der geraden und der ungeraden Amplitude einen hohen konstanten Level, also einen Wirkungsquerschnitt, der unabhängig vom Zwischenwinkel ist. Auf diesem Level erhebt sich ein Peak, dessen Maximum bei einem Zwischenwinkel  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  liegt. Der konstante Level ist ein Indiz dafür, daß die langsamen Elektronen vorwiegend durch den Shake-off ins Kontinuum gelangen. Bei einer Energieaufteilung von 30 eV  $\leftrightarrow$  420 eV zeigt sich eine gänzlich andere Verteilung: Das Maximum befindet sich nicht mehr bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$ , sondern bei  $\vartheta_{12} = 110^\circ$  bei der geraden und  $90^\circ$  bei der ungeraden Amplitude. Zu beiden Seiten des Peaks fällt die Amplitude stark ab. Diese Änderung des Verlaufes steht im Gegensatz zum Verlauf der geraden und ungeraden Amplitude 100 eV über der Schwelle, deren qualitativer Verlauf weitgehend unabhängig von der Energieaufteilung ist und ein ausgeprägtes Maximum bei  $\vartheta_{12} = 180^\circ$  aufweist. Der Peak bei einem Zwischenwinkel von  $\vartheta_{12} = 110^\circ$  weist darauf hin, daß 30 eV Elektronen einen (e,2e)-Stoß benötigen, um ins Kontinuum zu gelangen.

Die Änderung des qualitativen Verlaufes der Amplituden in Abhängigkeit von der Energieaufteilung zeigt deutlich, daß sich die Dynamik der beiden Elektronen in Abhängigkeit der Energieaufteilung ändert. Langsame Elektronen gelangen hauptsächlich durch den Shake-off ins Kontinuum, während etwas schnellere Elektronen (30 eV) einen (e,2e)-Stoß brauchen, um ins Kontinuum emittiert zu werden.

Der *Einfluß der ungeraden Amplitude* relativ zur geraden ist bei 450 eV über der Schwelle wesentlich *größer* als bei 100 eV über der Schwelle. Des weiteren zeigt sich sowohl bei 100 eV als auch bei 450 eV über der Schwelle, daß das Verhältnis der geraden zur ungeraden Amplitude mit zunehmend symmetrischer Energieaufteilung wächst. Das heißt, mit asymmetrischer Energieaufteilung nimmt der Einfluß der ungeraden Amplitude auf die Winkelverteilung zu.

Die Phase zwischen beiden Amplituden liegt bei  $\Phi \cong 180^\circ$  und ist weitgehend konstant, also unabhängig vom Zwischenwinkel und von der Energieaufteilung. Dies zeigt, daß die Dynamik weitgehend durch die gerade und die ungerade Amplitude beschrieben wird.

Der Maximalwert des normierten Zirkularen Dichroismus ist bei 450 eV *wesentlich kleiner* als bei 100 eV über der Schwelle. Während für 100 eV ein  $CD_{n,max} \cong 0,7$  zu finden ist, beträgt der Wert für 450 eV über der Schwelle nur etwa  $CD_{n,max} \cong 0,2$ . Dies bestätigt die Annahme, daß der Zirkulare Dichroismus mit höherer Photon-Energie kleiner wird. Wie schon bei den Daten 100 eV über der Schwelle findet man auch hier, daß die  $\varphi_{12}$ -Position des Maximums stark von der Energieaufteilung abhängt: Die Extrema entfernen sich mit zunehmender asymmetrischer Energieaufteilung von  $\varphi_{12} = 180^\circ$ .

Auch bei 450 eV über der Schwelle stimmen die experimentellen Daten gut mit der CCC-Theorie in Geschwindigkeitsform überein.

### Ausblick

Nach Stephan Keller [22] kann der Zirkulare Dichroismus mit dem TS1 in Verbindung gebracht werden. Es ist experimentell aber noch nicht nachgewiesen, daß diese Korrelation tatsächlich besteht. Eine Überprüfung ist z.B. dadurch möglich, daß man alle Energieaufteilungen der Photodoppelionisation bei einer Überschußenergie  $E_{exc} = 450$  eV mißt und den normierten Zirkularen Dichroismus  $CD_n$  für verschiedene Energieaufteilungen aufträgt.

Die CCC-Rechnung läßt bei der Photodoppelionisation 450 eV über der Schwelle einen höheren Maximalwert  $CD_{n,max}$  mit zunehmend gleicher Energieaufteilung erwarten. Dies gilt es zu überprüfen. Dabei sollten auch die Quadrate der Amplituden  $|a_g|^2$  und  $|a_u|^2$  sowie deren Relativphase  $\Phi$  untersucht werden: Nach Gleichung 2.14 geht in den Zirkularen Dichroismus sowohl die Geometrie beider Elektronen ( $\sin\varphi_{12}$ ) als auch  $|a_g|$ ,  $|a_u|$  und der Sinus der Phase  $\Phi$  zwischen beiden Amplituden ein. Ein verschwindender Zirkularer Dichroismus könnte durch den Sinus der Phase<sup>3</sup> als auch durch eine verschwindende gerade oder ungerade Amplitude bewirkt werden. Da die Daten für 450 eV über der Schwelle einen abnehmenden Zirkularen Dichroismus für noch höhere Energien erwarten lassen, stellt sich die Frage, ob die Quadrate einer oder beider Amplituden oder der Sinus der Phase gegen Null geht.

Unbekannt ist auch noch, bei welcher Photon-Energie die Dipol-Näherung nicht mehr gültig ist und bei welcher Energie der TS1 als Doppelionisationsmechanismus nicht mehr auftritt. Von Amusia und Drukarev wurde der „equal energy sharing“-Mechanismus vorhergesagt, der nach der Theorie allerdings erst ab einer Energie von  $E_\gamma = 4$  keV eintreten kann, wenn die Dipol-Näherung nicht mehr gültig ist. Zu untersuchen wäre, ob dieser Mechanismus existiert und ab welcher Photon-Energie er einsetzt.

In dieser Arbeit wird ausschließlich die Photodoppelionisation durch Absorption innerhalb der Dipol-Näherung diskutiert. Bei höheren Photon-Energien kommt die Compton-Streuung als weitere Reaktion hinzu, die eine Doppelionisation hervorrufen kann. Da bisher nur das Verhältnis der Doppel- zur Einfachionisation durch Compton-

---

<sup>3</sup>Die Daten für 100 eV und 450 eV zeigen, daß die  $\varphi_{12}$ -Abhängigkeit der Phase mit größerer Photon-Energie abnimmt. Des weiteren beträgt die Phase  $\Phi$  etwa  $180^\circ$ , somit  $\sin\Phi=0$ .

Streuung untersucht wurde, stehen differentielle Wirkungsquerschnitte noch vollständig aus. Durch die Messung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts der Doppelionisation durch Compton-Streuung läßt sich die Elektronenkorrelation für den Fall untersuchen, daß sich das Photon-absorbierende Elektron weit weg vom Kern befindet.

Ein weiterer Aspekt der Photodoppelionisation ist die Photodoppelionisation von Molekülen und von leitenden und nichtleitenden Festkörpern. Bei der Photodoppelionisation von Molekülen spielen zusätzliche Aspekte, wie Struktur des Moleküls und innere Freiheitsgrade – wie Rotation und Schwingung – eine Rolle. Des weiteren können Interferenzeffekte auftreten. Bei der Untersuchung der Emission von zwei Elektronen aus einem Festkörper ist der Einfluß der Gitterstruktur auf die Elektronen-Dynamik von Relevanz.

Die hier vorgestellten Ergebnisse, speziell zur Dominanz der beiden Doppelionisationsmechanismen Shake-off und Two-Step-One in Abhängigkeit der Photon-Energie und der Energieaufteilung, liefern einen wichtigen Beitrag für das Verständnis der Dynamik der Elektronen bei der Photodoppelionisation von Helium.



# Anhang A

## Atomare Einheiten

Für die Beschreibung von atomaren Prozessen werden häufig die atomaren Einheiten gebraucht. Diesen Einheiten liegt das Wasserstoff-Atom als Maßeinheit zugrunde. Das Elektron auf der Bohr'schen Bahn definiert die atomaren Einheiten. In der folgenden Tabelle ist die Umrechnung von atomaren Einheiten in SI-Einheiten zu finden.

Bohrscher Radius:	$r_B = 1 \text{ a.u.} = 5,2918 \cdot 10^{-11} \text{ m}$
Elementarladung:	$e = 1 \text{ a.u.} = 1,6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$
Elektronenmasse:	$m_e = 1 \text{ a.u.} = 9,1094 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
Geschwindigkeit:	$v_e = 1 \text{ a.u.} = 2,1877 \cdot 10^6 \text{ m/s}$
Energie:	$1 \text{ a.u.} = 4,360 \cdot 10^{-18} \text{ J} = 27,212 \text{ eV}$
Lichtgeschwindigkeit im Vakuum:	$c = 137,03 \text{ a.u.} = 2,99792 \cdot 10^8 \text{ m/s}$
Zeit:	$1 \text{ s} = 4,1341 \cdot 10^{16} \text{ a.u.}$



# Anhang B

## Verzeichnis der verwendeten Symbole

Zeichen	Bedeutung
$\gamma$	Photon
$E$	Energie
$E_\gamma$	Photonenergie
$E_{exc}$	Überschußenergie, Energie über der Schwelle
$E_1$	Energie des ersten Elektrons, bei Winkelverteilungen die des festgehaltenen Elektrons
$E_2$	Energie des zweiten Elektrons, bei Winkelverteilungen die des komplementären Elektrons
$E_{IP}$	Ionisationspotential
$\vec{p}, p$	Impuls, Impulskomponente
$\vec{p}_{1,2}$	Impuls des ersten, bzw. zweiten Elektrons
$\vec{p}_{He^{2+}}$	Impuls des Heliumkerns
$\vec{p}_{He^{1+}}$	Impuls des einfach geladenen Heliumions
$m$	Masse
$t$	Flugzeit vom Target zum Detektor
$t_0$	Flugzeit vom Target zum Detektor für $p = 0$
$\vec{v}, v$	Geschwindigkeit, Geschwindigkeitskomponente
$x$	Ort in Lichtausbreitungsrichtung
$y$	Ort in Jetrichtung
$z$	Ort in Richtung des elektrischen Spektrometerfeldes
$a_g$	gerade Amplitude
$a_u$	ungerade Amplitude
$\Phi$	Phase zwischen der geraden und ungeraden Amplitude
$q$	elektrische Ladung
$\mathcal{E}$	elektrische Feldstärke
$B$	Magnetfeld
$\lambda_0$	Undulatorlänge
$R_\gamma$	Verhältnis der Photodoppel- zur Photoeinfachionisation durch Photo-Absorption
$R_C$	Verhältnis der Photodoppel- zur Photoeinfachionisation durch Compton-Streuung

Zeichen	Bedeutung
$L$	Drehimpuls
$M$	Projektion des Drehimpulses auf die Quantisierungsachse
$\vartheta$	Polarwinkel
$\varphi$	Azimutalwinkel
$\Omega$	Raumwinkel

Index	Bedeutung
$\gamma$	Photon(-energie)
$exc$	Überschuß(-energie)
$e, 1, 2$	Elektron(-nen)
$He^{1+}$	einfach geladenes Heliumion
$He^{2+}$	doppelt geladenes Heliumion (Heliumkern)
$rec$	Rückstoßion (allgemein)
$i$	Anfangszustand
$f$	Endzustand
$\sigma^{1+}$	Wirkungsquerschnitt der Photoeinfachionisation
$\sigma^{2+}$	Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation

Abkürzung	Bedeutung
PDI	Photodoppelionisation
SO	Shake-off-Mechanismus
TS1	Two-Step-One-Mechanismus
CD	(unnormierter) Zirkularer Dichroismus
$CD_n$	normierter Zirkularer Dichroismus
4DCS	vierfach differentieller Wirkungsquerschnitt
5DCS	fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt
MCP	Micro-Channel-Plate
TDC	Time to Digital Converter
COLTRIMS	COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy
EPU	Elliptically Polarized Undulator
EPU5	verwendeter EPU mit einer Undulatorlänge von 5 cm
ALS	Advanced Light Source
LBNL	Lawrence Berkeley National Laboratory
3C	3-Coulomb-Wave (Rechnung)
CCC	convergent-close-coupling (Rechnung)

# Anhang C

## Ausgewählte Spektren

Im folgenden werden ausgewählte Spektren des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts mit linear polarisiertem Licht 100 eV (Abbildung C.1 und C.2) und 450 eV (Abbildung C.3, C.4 und C.5) über der Schwelle gezeigt.

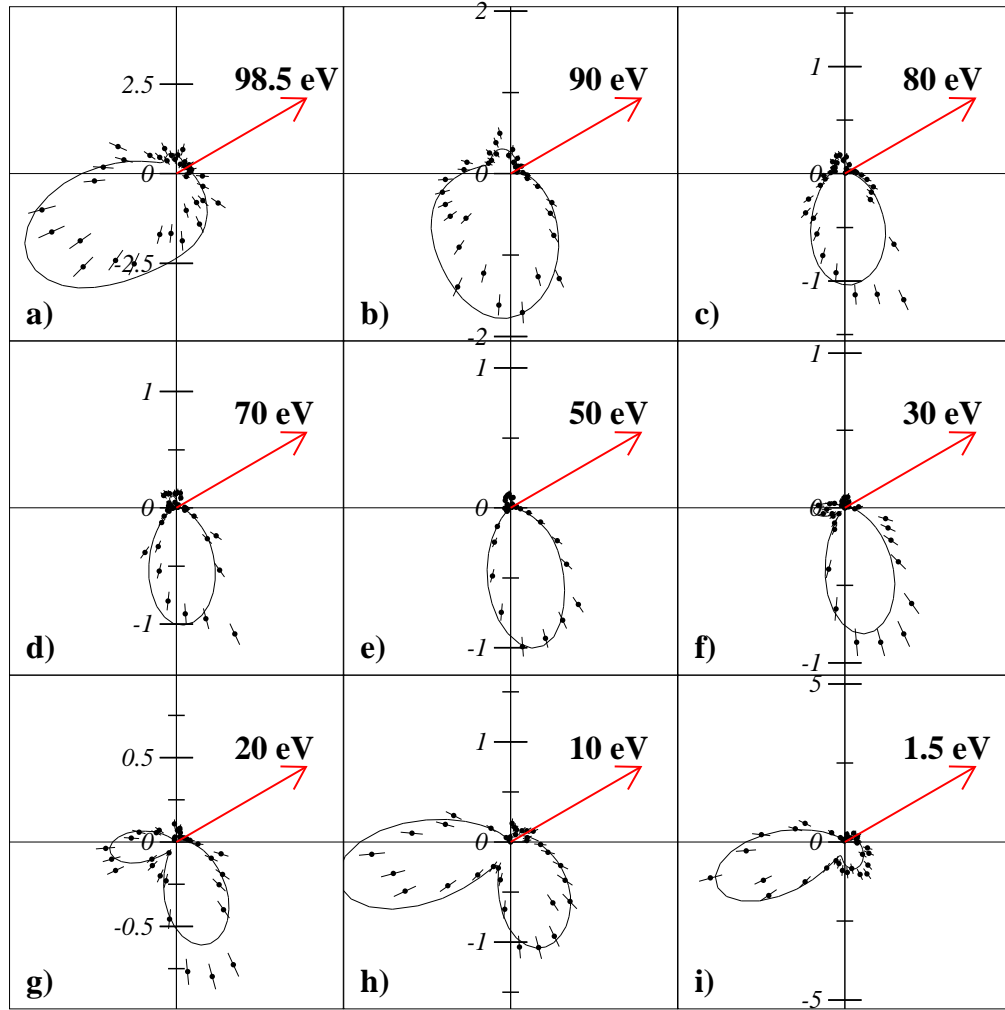


Abbildung C.1: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt 100 eV über der Schwelle in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . In allen Abbildungen ist die Polarisationsachse horizontal. Die Richtung des festgehaltenen Elektrons  $e_1$  ist durch den Pfeil markiert. Gezeigt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. In allen Abbildungen ist der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor  $\vartheta_1 = (30 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 15^\circ$  in der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist. (a)  $97 < E_1 < 100 \text{ eV}$ , (b)  $85 < E_1 < 95 \text{ eV}$ , (c)  $75 < E_1 < 85 \text{ eV}$ , (d)  $65 < E_1 < 75 \text{ eV}$ , (e)  $45 < E_1 < 55 \text{ eV}$ , (f)  $25 < E_1 < 35 \text{ eV}$ , (g)  $25 < E_1 < 35 \text{ eV}$ , (h)  $5 < E_1 < 15 \text{ eV}$ , (i)  $0 < E_1 < 3 \text{ eV}$ .

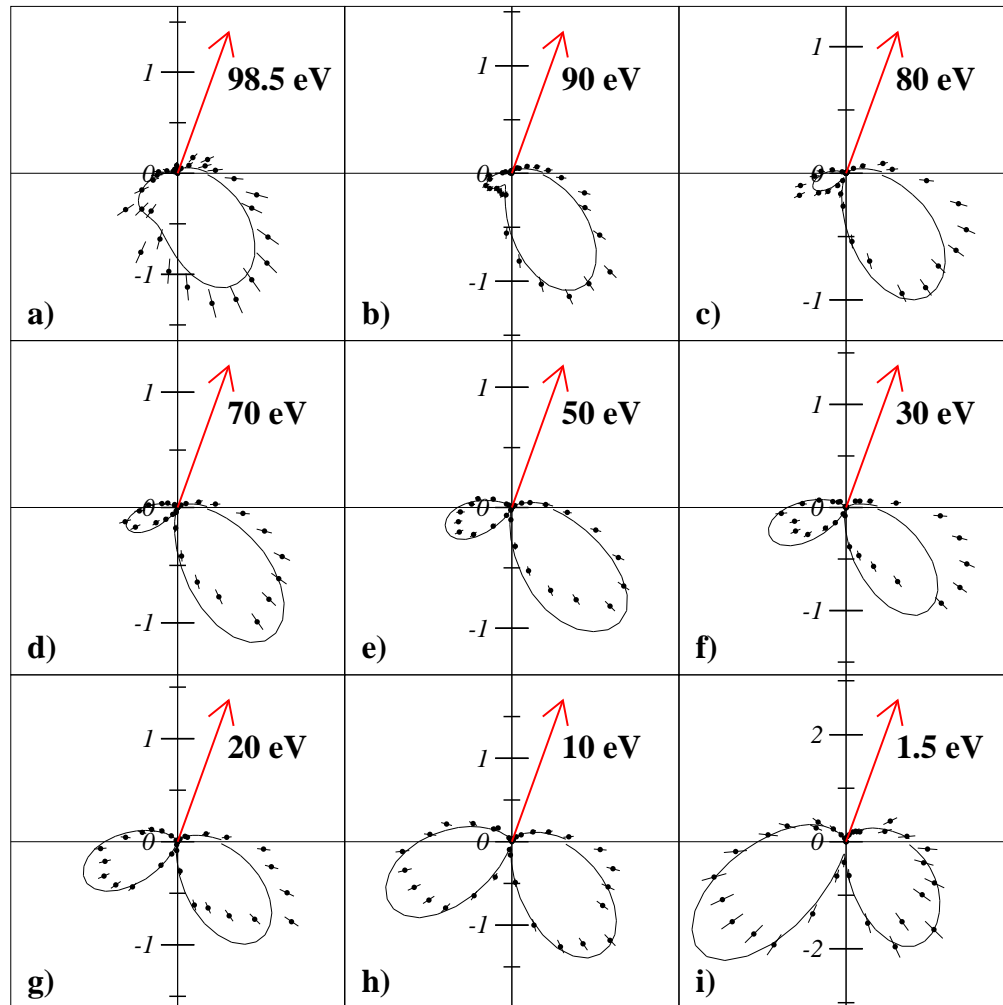


Abbildung C.2: Wie in Abbildung C.1, außer: Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor ist  $\vartheta_1 = (70 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 15^\circ$  in der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist.

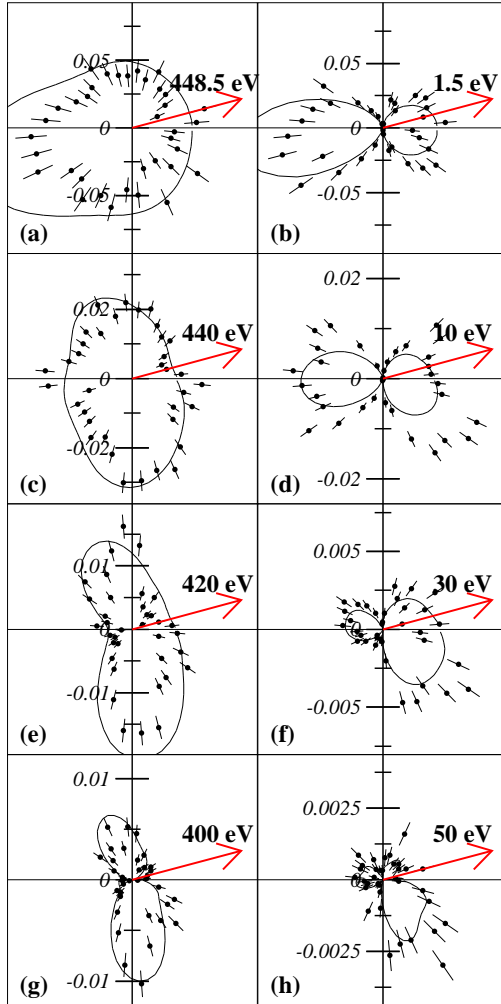


Abbildung C.3: Vollständig differentieller Wirkungsquerschnitt 450 eV über der Schwelle in  $\text{barn}/(\text{eV} \cdot \text{sterad}^2)$ . In allen Abbildungen ist die Polarisationsachse horizontal. Die Richtung und die Energie des festgehaltenen Elektrons ist durch den Pfeil gegeben. Gezeigt ist die Winkelverteilung des komplementären Elektrons. Die durchgezogene Linie ist eine CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. In allen Abbildungen ist der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor  $\vartheta_1 = (15 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 25^\circ$  in der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist. (a)  $447 < E_1 < 450 \text{ eV}$ , (b)  $0 < E_1 < 3 \text{ eV}$ , (c)  $434 < E_1 < 446 \text{ eV}$ , (d)  $4 < E_1 < 16 \text{ eV}$ , (e)  $410 < E_1 < 430 \text{ eV}$ , (f)  $20 < E_1 < 40 \text{ eV}$ , (g)  $390 < E_1 < 410 \text{ eV}$ , (h)  $40 < E_1 < 60 \text{ eV}$ .



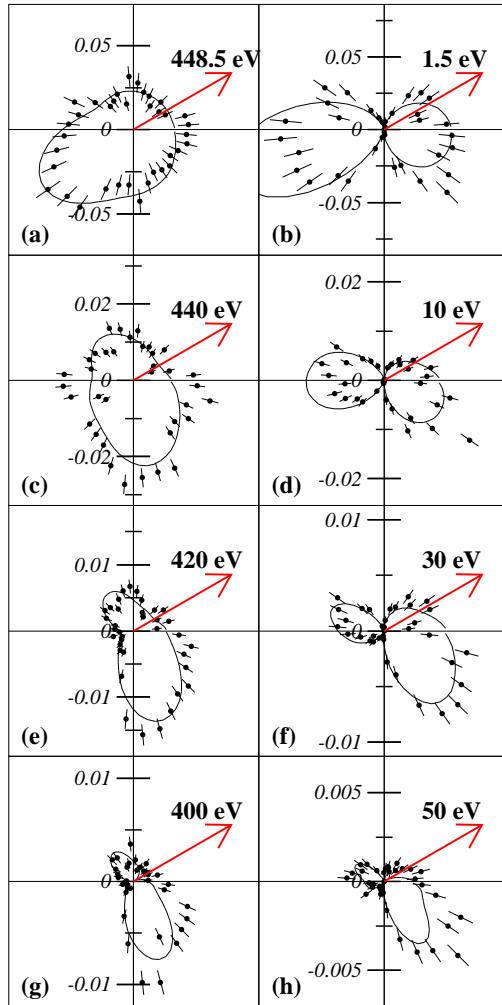


Abbildung C.4: Wie in Abbildung C.3, außer: Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor ist  $\vartheta_1 = (30 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb von  $\pm 25^\circ$  in der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist.

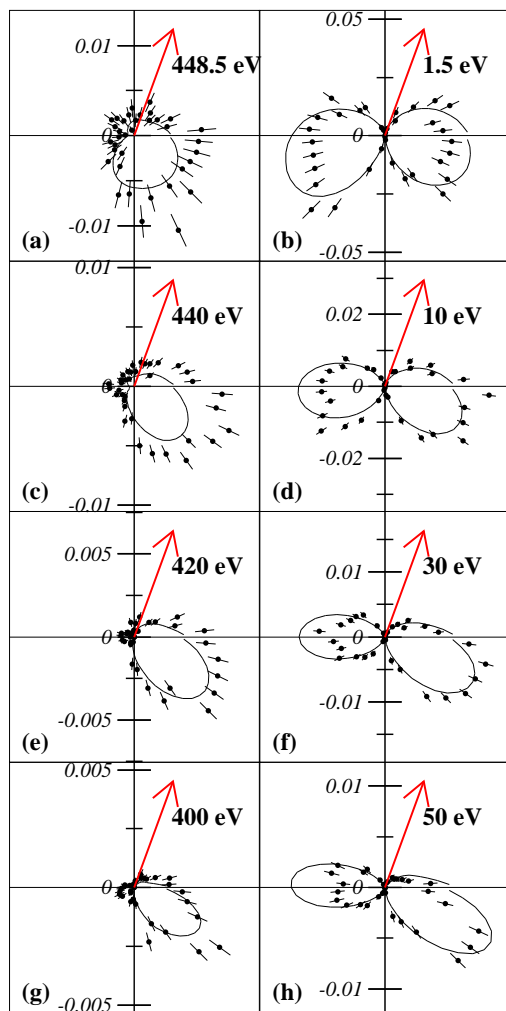


Abbildung C.5: Wie in Abbildung C.3, außer: Der Winkel zwischen dem festgehaltenen Elektron und dem Polarisationsvektor ist  $\vartheta_1 = (70 \pm 5)^\circ$ , das komplementäre Elektron ist innerhalb  $\pm 25^\circ$  der Ebene, die durch den Polarisationsvektor und das festgehaltenen Elektron aufgespannt ist.

## Anhang D

### Vergleich von $|a_g|^2$ , $|a_u|^2$ und $\Phi$ mit einer Shake-off-only-CCC-Rechnung

Wie anhand der Winkelspektren bei einer Energie von 450 eV über der Schwelle gezeigt wurde, überwiegt der Shake-off bei extrem asymmetrischer Energieaufteilung, während langsame Elektronen mit etwa 30 eV und mehr Energie einen (e,2e)-Stoß benötigen, um ins Kontinuum zu gelangen. Als vergleichende Rechnung wurde die Arbeit von Shi und Lin [107] herangezogen, um zu untermauern, daß die Winkelverteilung des sehr langsamen Elektrons die typische Signatur des Shake-offs zeigt.

Innerhalb der CCC-Rechnung, die insgesamt sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zeigt, gibt es die Möglichkeit, nur den Shake-off Anteil zu berechnen. Dieser Shake-off ist aber von seiner Definition her nicht mit den Shake-off von Shi und Lin [107] und nicht mit der Definition von Åberg [26] identisch. Hier wird der Fall auch Shake-off genannt, wenn die beiden Elektronen nach der Absorption des Photons miteinander wechselwirken, diese Wechselwirkung aber den Quantenzustand des zweiten, langsameren Elektrons nicht ändert.

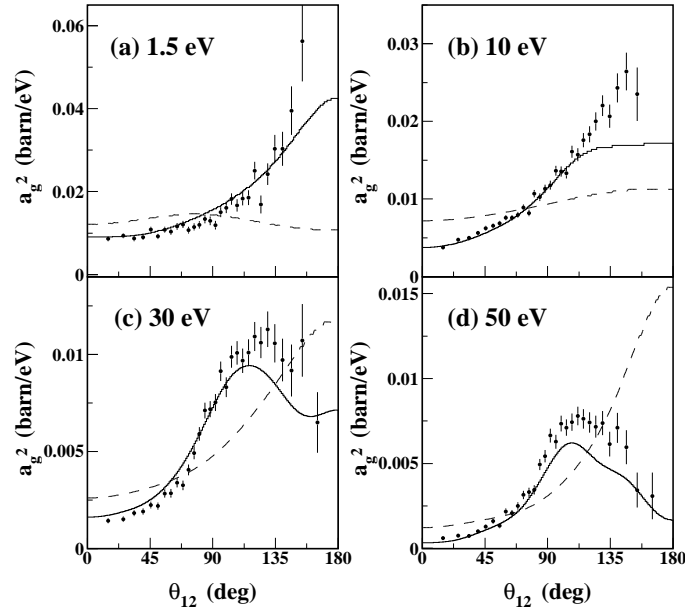


Abbildung D.1:  $|a_g|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Die durchgezogene Linie ist eine „volle“ CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die gestrichelte Linie ist eine Shake-off-only-Rechnung auch in Geschwindigkeitsform. Energie-Integrationsgrenzen: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $25 < E_e < 35$  eV, (d)  $45 < E_e < 55$  eV.

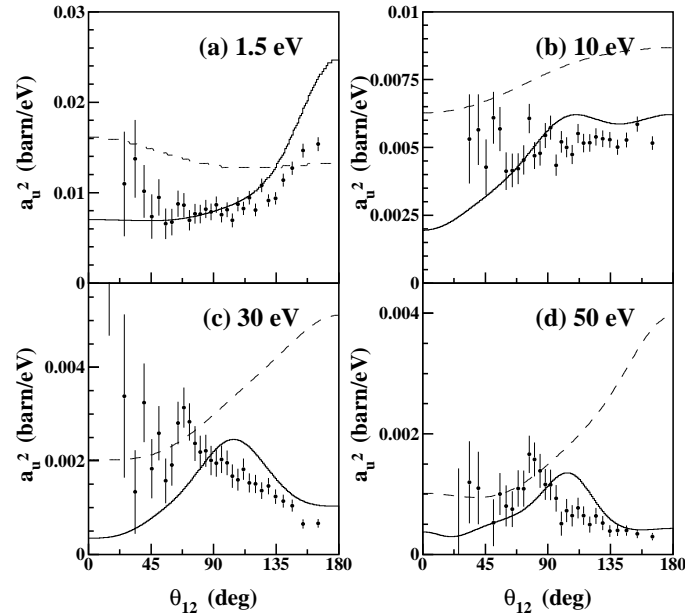


Abbildung D.2:  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Die durchgezogene Linie ist eine „volle“ CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die gestrichelte Linie ist eine Shake-off-only-Rechnung auch in Geschwindigkeitsform. Energie-Integrationsgrenzen: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $25 < E_e < 35$  eV, (d)  $45 < E_e < 55$  eV.

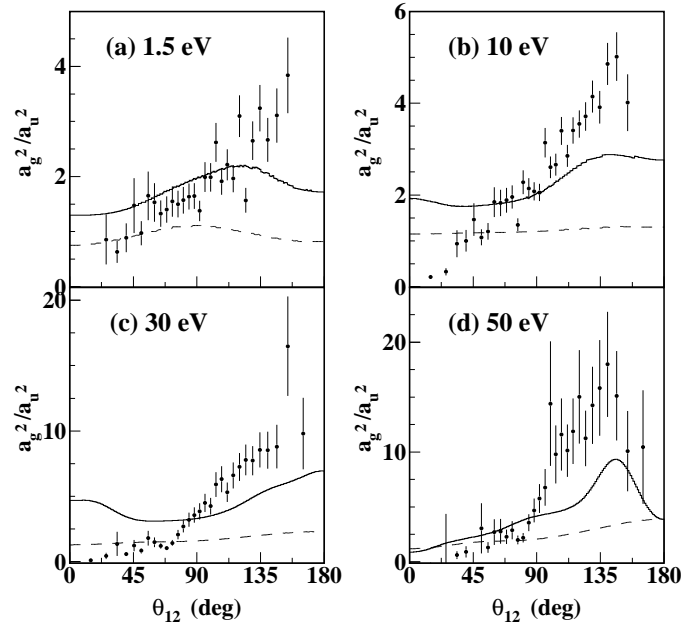


Abbildung D.3: Verhältnis von  $|a_g|^2$  zu  $|a_u|^2$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Die durchgezogene Linie ist eine „volle“ CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die gestrichelte Linie ist eine Shake-off-only-Rechnung auch in Geschwindigkeitsform. Energie-Integrationsgrenzen: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $25 < E_e < 35$  eV, (d)  $45 < E_e < 55$  eV.

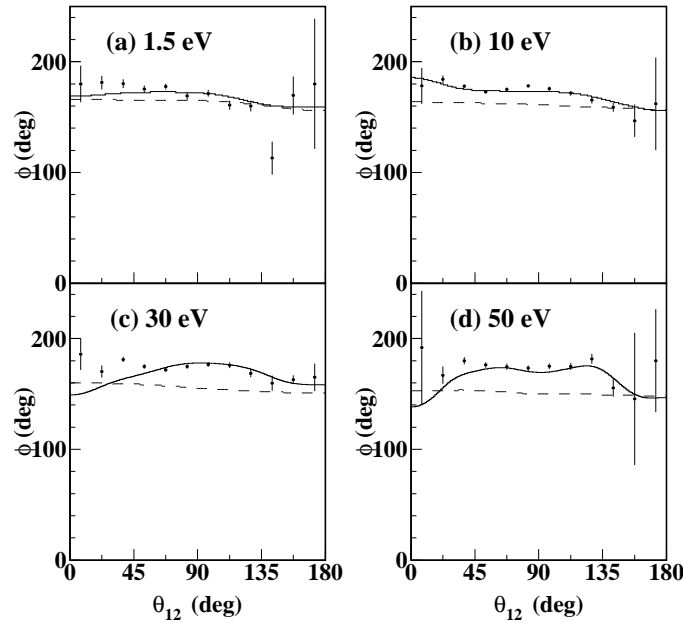


Abbildung D.4: Phase zwischen  $a_g$  und  $a_u$  bei  $E_{exc} = 450$  eV. Die Phase  $\Phi$  ist gegeben durch  $\sin\Phi = CD/(-4 \cdot \sin\varphi_{12} \cdot |a_g| \cdot |a_u|)$ . Die durchgezogene Linie ist eine „volle“ CCC-Rechnung in Geschwindigkeitsform. Die gestrichelte Linie ist eine Shake-off-only-Rechnung auch in Geschwindigkeitsform. Energie-Integrationsgrenzen: (a)  $0 < E_e < 3$  eV, (b)  $5 < E_e < 15$  eV, (c)  $25 < E_e < 35$  eV, (d)  $45 < E_e < 55$  eV. Für zirkular polarisiertes Licht: Die beiden Elektronen sind in einer Ebene senkrecht zur Lichtausbreitung x:  $\vartheta_{x1} = \vartheta_{x2} = 90^\circ \pm 25^\circ$ .



## Anhang E

### Gleichung 2.20 in der Parametrisierung von Huetz et al.

Die Gültigkeit von Gleichung 2.20 soll im folgenden plausibel gemacht werden:

$$\begin{aligned} |T_{\sigma^+}|^2 + |T_{\sigma^-}|^2 &= |T_x|^2 + |T_y|^2 \\ \Leftrightarrow 5\text{DCS}_{\sigma^-} + 5\text{DCS}_{\sigma^+} &= 5\text{DCS}_{\varepsilon_x} + 5\text{DCS}_{\varepsilon_y} \\ &= 2\{|a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12}) \\ &\quad + |a_u|^2 (1 - \cos \varphi_{12})\} = \Sigma \end{aligned} \quad (\text{E.1})$$

$$\begin{aligned} 5\text{DCS}_{\sigma^+} + 5\text{DCS}_{\sigma^-} &= \frac{1}{2}\{|a_g|^2 (2 + 2 \cos \varphi_{12}) + |a_u|^2 (2 - 2 \cos \varphi_{12}) \\ &\quad - 4 \cdot \sin \varphi_1 \cdot \sin \varphi_2 \cdot \sin \varphi_{12} \text{Im}\{a_g a_u^*\}\} \\ &+ \frac{1}{2}\{|a_g|^2 (2 + 2 \cos \varphi_{12}) + |a_u|^2 (2 - 2 \cos \varphi_{12}) \\ &\quad + 4 \cdot \sin \varphi_1 \cdot \sin \varphi_2 \cdot \sin \varphi_{12} \text{Im}\{a_g a_u^*\}\} \\ &= 2\{|a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12}) + |a_u|^2 (1 - \cos \varphi_{12})\} \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

Die 5DCS für linear polarisiertes Licht lassen sich folgendermaßen ausdrücken; hierbei wurde der Winkel  $\varphi_2$  durch den Zwischenwinkel  $\varphi_{12}$  ausgedrückt:

$$\begin{aligned}
 5DCS_{\varepsilon_x} &= |a_g(1 + \cos \varphi_{12}) + a_u(1 - \cos \varphi_{12})|^2 \\
 &= |a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12})^2 + |a_u|^2 (1 - \cos \varphi_{12})^2 \\
 &\quad + 2(1 - \cos^2 \varphi_{12}) \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} \\
 &= |a_g|^2 + 2|a_g|^2 \cos \varphi_{12} + |a_g|^2 \cos^2 \varphi_{12} \\
 &\quad + |a_u|^2 + 2|a_u|^2 \cos \varphi_{12} + |a_u|^2 \cos^2 \varphi_{12} \\
 &\quad + 2 \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} - 2 \cos^2 \varphi_{12} \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} \tag{E.3}
 \end{aligned}$$

Bei  $5DCS_{\varepsilon_y}$  ist die Polarisationsachse um  $90^\circ$  gedreht; deshalb ist  $\cos \varphi_1 = 0$ ;  $\cos \varphi_2$  läßt sich als Zwischenwinkel nun folgendermaßen ausdrücken  $\cos \varphi_2 = \cos \varphi_{12} - 90^\circ$ . Somit läßt sich  $5DCS_{\varepsilon_y}$  folgendermaßen berechnen:

$$\begin{aligned}
 5DCS_{\varepsilon_y} &= |a_g(\sin \varphi_{12}) - a_u(\sin \varphi_{12})|^2 \\
 &= |a_g|^2 \sin^2 \varphi_{12} + |a_u|^2 \sin^2 \varphi_{12} - 2 \sin^2 \varphi_{12} \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} \\
 &= |a_g|^2 (1 - \cos^2 \varphi_{12}) + |a_u|^2 (1 - \cos^2 \varphi_{12}) - 2(1 - \cos^2 \varphi_{12}) \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} \\
 &= |a_g|^2 - |a_g|^2 \cos^2 \varphi_{12} + |a_u|^2 - |a_u|^2 \cos^2 \varphi_{12} \\
 &\quad - 2 \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} + 2 \cos^2 \varphi_{12} \operatorname{Re}\{a_g a_u^*\} \tag{E.4}
 \end{aligned}$$

Gleichung E.3 addiert zu Gleichung E.4 ergibt:

$$\begin{aligned}
 5DCS_{\varepsilon_x} + 5DCS_{\varepsilon_y} &= 2|a_g|^2 + 2|a_u|^2 + 2|a_g|^2 \cos \varphi_{12} + 2|a_u|^2 \cos \varphi_{12} \\
 &= 2\{|a_g|^2 (1 + \cos \varphi_{12}) + |a_u|^2 (1 - \cos \varphi_{12})\} \tag{E.5}
 \end{aligned}$$

Dies ist mit dem Ergebnis von Gleichung E.1 identisch.



# Literaturverzeichnis

- [1] J. Briggs und V. Schmidt. *J. Phys. B* 33, R1 (2000).
- [2] T. Vogt. Diplomarbeit, Universität Frankfurt/Main (1996).
- [3] R. Dörner, H. Schmidt-Böcking, Th. Weber, T. Jahnke, M. Schöffler, A. Knapp, M. Hattass, A. Czasch, L.Ph. H. Schmidt und O. Jagutzki. *Radiation Physics and Chemistry* 70, 191–206 (2004).
- [4] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer und H. Schmidt-Böcking. *Physics Reports* 330, 96–192 (2000).
- [5] R. Dörner, J. Feagin, C.L. Cocke, H. Bräuning, O. Jagutzki, M. Jung, E.P. Kanter, H. Khemliche, S. Kravis, V. Mergel, M.H. Prior, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, J. Ullrich, M. Unverzagt und T. Vogt. *Phys. Rev. Lett.* 77, 1024 (1996). see also erratum in *Phys. Rev. Lett.* 78, 2031 (1997).
- [6] R. Dörner, H. Bräuning, J.M. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M.H. Prior, J. Ullrich, C.L. Cocke und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. A* 57, 1074 (1998).
- [7] A. Kheifets. *J. Phys. B* 34, L247 (2001).
- [8] Z.J. Teng und R. Shakeshaft. *Phys. Rev. A* 49, 3597 (1994).
- [9] A. Huetz, P. Selles, D. Waymel und J. Mazeau. *J. Phys. B* 24, 1917 (1991).
- [10] L. Malegat, P. Selles und A. Huetz. *J. Phys. B* 30, 251 (1997).
- [11] T. Ichihara, K. Hino und J.H. McGuire. *Phys. Rev. A* 44, R6980 (1991).
- [12] L. Spielberger. Doktorarbeit, Universität Frankfurt/Main (1996).
- [13] R. Dörner, T. Vogt, V. Mergel, H. Khemliche, S. Kravis, C.L. Cocke, J. Ullrich, M. Unverzagt, L. Spielberger, M. Damrau, O. Jagutzki, I. Ali, B. Weaver, K. Ullmann, C.C. Hsu, M. Jung, E.P. Kanter, B. Sonntag, M.H. Prior, E. Rotenberg, J. Denlinger, T. Warwick, S.T. Manson und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.* 76, 2654 (1996).

- [14] J.C. Levin, D.W. Lindle, N. Keller, R.D. Miller, Y. Azuma, N.Berrah Mansour, H.G. Berry und I.A. Sellin. *Phys. Rev. Lett.* 67, 968 (1991).
- [15] J.A.R. Samson, W.C. Stolte, Z.X. He, J.N. Cutler, Y. Lu und R.J. Bartlett. *Phys. Rev. A* 57, 1906 (1998).
- [16] L. Spielberger, O. Jagutzki, R. Dörner, J. Ullrich, U. Meyer, V. Mergel, M. Unverzagt, M. Damrau, T. Vogt, I. Ali, Kh. Khayyat, D. Bahr, H.G. Schmidt, R. Frahm und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.* 74, 4615 (1995).
- [17] M. Pont und R. Shakeshaft. *Phys. Rev. A* 51, 494 (1995).
- [18] K.W. Meyer, J.L. Bohn, C.H. Green und B.D. Esry. *J. Phys. B* 30, L641 (1997).
- [19] J.Z. Tang und I. Shimamura. *Phys. Rev. A* 52, R3413 (1995).
- [20] T. Schneider, P. L. Chocian und J.M. Rost. *Phys. Rev. Lett.* 89, 073002 (2002).
- [21] T. Schneider und J.M. Rost. *Phys. Rev. A* 67, 062704 (2003).
- [22] S. Keller. *J. Phys. B* 33, L513 (2000).
- [23] T.A. Carlson. *Phys. Rev.* 156, 142 (1967).
- [24] J.A.R. Samson. *Phys. Rev. Lett.* 65, 2861 (1990).
- [25] F.W. Byron und C.J. Joachain. *Phys. Rev.* 164, 1 (1967).
- [26] T. Åberg. *Phys. Rev.* 156, 35 (1967).
- [27] J.H. McGuire. *Electron Correlation Dynamics in Atomic Collisions*, Cambridge University Press (1997).
- [28] T. Pattard, T. Schneider und J.M. Rost. *J. Phys. B* 36, L189 (2003).
- [29] M. Ya. Amusia, E. G. Drukarev, V. G. Gorshkov und M. P. Kazaachkov. *J. Phys. B* 8, 1248 (1975).
- [30] R. H. Pratt, T. Suric und K. Pisk. *Journal of the Korean Physical Society* 32, 356 (1998).
- [31] T. Suric, K. Pisk und R. H. Pratt. *X-Ray and Inner Shell Processes, 17th International Conference* 1997.
- [32] M. Ya. Amusia, E. G. Drukarev, R. Krivec und V. B. Mandelzweig. *Phys. Rev. A* 66, 052706 (2002).
- [33] L. Spielberger, O. Jagutzki, B. Krässig, U. Meyer, Kh. Khayyat, V. Mergel, Th. Tschentscher, Th. Buslaps, H. Bräuning, R. Dörner, T. Vogt, M. Achler, J. Ullrich, D.S. Gemmell und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.* 76, 4685 (1996).

- [34] L. Spielberger, H. Bräuning, A. Muthig, J.Z. Tang, J. Wang, Y. Qui, R. Dörner, O. Jagutzki, Th. Tschentscher, V. Honkimäki, V. Mergel, M. Achler, Th. Weber, Kh. Khayyat, J. Burgdörfer, J. McGuire und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. A* 59, 371 (1999).
- [35] K. Hino, T. Ishihara, F. Shimizu, N. Toshima und J.H. McGuire. *Phys. Rev. A* 48, 1271 (1993).
- [36] D. Proulx und R. Shakeshaft. *Phys. Rev. A* 48, R875 (1993).
- [37] H. Schmidt-Böcking, V. Mergel, R. Dörner, C. L. Cocke, O. Jagutzki, L. Schmidt, Th. Weber, H. J. Lüdde, E. Weigold, J. Berakdar, H. Cederquist, H. T. Schmidt, R. Schuch und A. S. Kheifets. *Europhys. Lett.* 62, 477 (2003).
- [38] M. Achler. Doktorarbeit, Universität Frankfurt/Main (1999).
- [39] M.Ya. Amusia. Plenum Press, New York, (1990).
- [40] G. Dawber, L. Avaldi, A. G. McConkey, H. Rojas, M. A. MacDonald und G. C. King. *J. Phys. B* 28, L271 (1995).
- [41] A. Huetz und J. Mazeau. *Phys. Rev. Lett.* 85, 530 (2000).
- [42] H.P Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A. Kheifets, I. Bray, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *J. Phys. B* 31, 5149 (1998).
- [43] S. Cvejanovic, J. P. Wightman, T. J. Reddish, F. Maulbetsch, M. A. MacDonald, A. S. Kheifets und I. Bray. *J. Phys. B* 33, 265 (2000).
- [44] A. Huetz, P. Lablanquie, L. Andric, P. Selles und J. Mazeau. *J. Phys. B* 27, L13 (1994).
- [45] P. Lablanquie, J. Mazeau, L. Andric, P. Selles und A. Huetz. *Phys. Rev. Lett.* 74, 2192 (1995).
- [46] O. Schwarzkopf und V. Schmidt. *J. Phys. B* 28, 2847 (1995).
- [47] J. Viefhaus, L. Avaldi, F. Heiser, R. Hentges, O. Gessner, A. Rüdel, M. Wiedenhöft, K. Wielczek und U. Becker. *J. Phys. B* 29, L729 (1996).
- [48] J. P. Wightman, S. Cvejanovic und T. J. Reddish. *J. Phys. B* 31, 1753 (1998).
- [49] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger und V. Schmidt. *Phys. Rev. Lett.* 70, 3008 (1993).
- [50] F. Maulbetsch und J.S. Briggs. *J. Phys. B* 28, 551 (1995).
- [51] G.H. Wannier. *Phys. Rev.* 90, 817 (1953).

- [52] M. Walter. Doktorarbeit, Universität Freiburg (2000).
- [53] H.P Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *J. Phys. B* 30, L649 (1997).
- [54] J.M. Feagin. *J. Phys. B* 28, 1495 (1995).
- [55] J.M. Feagin. *J. Phys. B* 29, L551 (1996).
- [56] A.K. Kazanski und V.N. Ostrovsky. *Phys. Rev. A* 51, 3698 (1995).
- [57] A.K. Kazanski und V.N. Ostrovsky. *Phys. Rev. A* 48, R871 (1993).
- [58] A.K. Kazanski und V.N. Ostrovsky. *J. Phys. B* 27, 447 (1994).
- [59] M. Walter, J.S. Briggs und J.S. Feagin. *J. Phys. B* 33, 2907 (2000).
- [60] J. Berakdar und H. Klar. *Phys. Rev. Lett.* 69, 1175 (1992).
- [61] J. Berakdar, H. Klar, A. Huetz und P. Selles. *J. Phys. B* 26, 1463 (1993).
- [62] J. Berakdar. *J. Phys. B* 31, 3167 (1998).
- [63] J. Viefhaus, L. Avaldi, G. Snell, M. Wiedenhöft, R. Hentges, A. Rüdel, F. Schäfer, D. Menke, U. Heinzmann, A. Engels, J. Berakdar, H. Klar und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.* 77, 3975 (1996).
- [64] M. Achler, V. Mergel, L. Spielberger, Y. Azuma R. Dörner und H. Schmidt-Böcking. *J. Phys. B* 34, 965 (2001).
- [65] S.A. Collins, S. Cvejanovic, C Dawson, T. Reddish, D.P. Seccombe, A. Huetz, L. Malegat, P. Selles, A.K. Kazansky, A. Danjo, K. Soejima, K. Okuno und A. Yagishita. *Phys. Rev. A* 65, 052717 (2002).
- [66] V.Mergel, M. Achler, R. Dörner, Kh. Khayyat, T. Kambara, Y. Awaya, V. Zoran, B. Nyström, L.Spielberger, J.H. McGuire, J. Feagin, J. Berakdar, Y. Azuma, und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.* 80, 5301 (1998).
- [67] K. Soejima, A. Danjo, K. Okuno und A. Yagishita. *Phys. Rev. Lett.* 83, 1546 (1999).
- [68] private Kommunikation Jamal Berakdar.
- [69] L. Malegat, P. Selles, P. Labalquie, J. Mazeau und A. Huetz. *J. Phys. B* 30, 263 (1997).
- [70] O. Schwarzkopf und V. Schmidt. *J. Phys. B* 28, 2847 (1995).
- [71] S. Cvejanovic und T. J. Reddish. *J. Phys. B* 33, 4691 (2000).

- [72] C. Dawson, S. Cvejanovic, D. P. Seccombe, T. J. Reddish, F. Maulbetsch, A. Huetz, J. Mazeau und A. S. Kheifets. *J. Phys. B* 34, L525 (2001).
- [73] G. Turri, L. Avaldi, P. Bolognesi, R. Camilloni, M. Coreno, J. Berakdar, A. S. Kheifets und G. Stefani. *Phys. Rev. A* 65, 034702 (2002).
- [74] F. Maulbetsch und J.S. Briggs. *J. Phys. B* 26, L647 (1994).
- [75] P. Bolognesi, A. S. Kheifets, I. Bray, L. Malegat, P. Selles, A. K. Kazansky und L. Avaldi. *J. Phys. B* 36, L241 (2003).
- [76] J. Berakdar. *J. Phys. B* 32, L27 (1999).
- [77] A. S. Kheifets, I. Bray, J. Berakdar und C. Dal Cappello. *J. Phys. B* 35, L15 (2002).
- [78] A. Kheifets und I. Bray. *Phys. Rev. Lett.* 81, 4588 (1998).
- [79] I. Bray und A. Stelbovics. *Phys. Rev. A* 46, 6995 (1992).
- [80] I. Bray und D. Fursa. *Phys. Rev. A* 54, 2991 (1996).
- [81] I. Bray und A. Stelbovics. *Phys. Rev. Lett.* 70, 746 (1992).
- [82] I. Bray. *Phys. Rev. A* 49, 1066 (1994).
- [83] J.A.R. Samson, Z.X. He, L. Yin und G.N. Haddad. *J. Phys. B* 27, 887 (1994).
- [84] R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Unverzagt, W. Schmitt, P. Jardin, R.E. Olson, R. Dörner, V. Mergel und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth. B* 107, 62 (1996).
- [85] (see [www.Roentdek.com](http://www.Roentdek.com) for details of the detectors).
- [86] <http://www.lbl.gov/MicroWorlds/ALSTool>.
- [87] A. T. Young, J. Feng, E. Arenholz, H. A. Padmore, T. Henderson, S. Marks, E. Hoyer, R. Schlueter, J. B. Kortright, V. Martynov, C. Steier und G. Portmann. *Nucl. Instr. Meth. A* 549, 467 (2001).
- [88] A. T. Young, E. Arenholz, S. Marks, R. Schlueter, C. Steier, H. A. Padmore, A.P. Hitchcock und D.G. Castner. *J. Synchrotron Rad.* 9, 270 (2002).
- [89] A. T. Young, V. Martynov und H. A. Padmore. *J. of Electron Spectroscopy* 101-103, 885 (1999).
- [90] <http://xdb.lbl.gov>.
- [91] <http://www.ep2.physik.uni-wuerzburg.de/lehrveranstaltungen>.
- [92] S. Sasaki. *Nucl. Instr. Meth. A* 347, 83 (1994).

- [93] <http://www.hmi.de/bereiche/SF/SF2/arbeitsg/bessy/sf204ab.html>.
- [94] Anweisungen zum Physikalischen Anfängerpraktikum (Teil 1) der J.W.Goethe-Universität.
- [95] private Kommunikation Elke Arenholz.
- [96] L. Schmidt. Doktorarbeit, Universität Frankfurt/Main (2000).
- [97] G. Brusdeylins, J. P. Toennies und R. Vollmer. *Symposion on Molecular Beams, Book of Abstracts. Perugia*, (1989).
- [98] V. Mergel. Diplomarbeit, Universität Frankfurt/Main (1994).
- [99] V. Mergel. Doktorarbeit, Universität Frankfurt/Main (1996).
- [100] W.C. Wiley und I.H. McLaren. *Rev. Sci. Instr.* 26, 1150 (1955).
- [101] Produktbeschreibung Valvo GmbH Microchannel Plates.
- [102] PAW Version 2.12/10; <http://wwwasd.web.cern.ch/wwwasd/paw>; Cern Library Program.
- [103] private Kommunikation B. Krässig.
- [104] A. Knapp, M. Walter, Th. Weber, A.L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, M. Schöffler, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Ph. H. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke, J. Feagin und R. Dörner. *J. Phys. B* 35, L521 (2002).
- [105] A. Kheifets private Kommunikation.
- [106] A. Knapp, A. Kheifets, I. Bray, Th. Weber, A. L. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Ph. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke und R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 89, 033004 (2002).
- [107] T. Y.Shi und C. D. Lin. *Phys. Rev. Lett.* 89, 163202 (2002).

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich auf vielfältige Weise unterstützt haben:

Ganz besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking für die herzliche Aufnahme in die Arbeitsgruppe und seine Fähigkeit, nicht nur mich von der faszinierenden und auch „verrückten“ Welt der Elektronen im Helium-Atom zu begeistern.

Ihm und Herrn Prof. Dr. Reinhard Dörner danke ich für das immer offene Ohr und die vielen Diskussionen, speziell rund um die Photodoppelionisation von Helium.

Herrn Dr. Lothar Schmidt danke ich für so manche technische Erklärungen. Sein praktisches Wissen über Vakuumtechnik, Elektronik und so vieles mehr hat mir immer weitergeholfen.

Herrn Dr. Ottmar Jagutzki und dem gesamten Team der Firma Roentdek, Kelkheim, danke ich für die Bereitstellung der Detektoren.

„Meinen“ Theoretikern Dr. Anatoli Kheifets von der Research School of Physical Sciences at the Australian National University in Canberra und Dr. Igor Bray von der Murdoch-University, Perth, Australien, danke ich für die vielen durchgeführten CCC-Rechnungen. Insbesondere Anatoli danke ich sehr für die ausführliche Beantwortung zahlreicher Fragen und seinen Anstoß, die Amplituden und deren Relativphase aus den COLTRIMS-Datensätzen zu extrahieren.

Herr Dr. Bertold Krässig vom Argonne National Laboratory in Argonne, IL (USA) hat mir viele Erläuterungen bzgl. der von ihm entwickelten Methode zur Extraktion der Amplituden und deren Relativphase aus einem COLTRIMS-Datensatz gegeben.

Herrn Dr. Jamal Berakdar vom Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, Halle, danke ich für die vielen Diskussionen, insbesondere zur Bedeutung des Zirkularen Dichroismus.

Herrn Dr. Michael Walter von der Albert-Ludwigs-Universität in Freiburg (jetzt an der University of Jyväskylä, Finnland) danke ich für die 3C-Rechnungen.

Herrn Alkis Müller danke ich für die Tipps und Tricks bei dem Programm Physics Analysis Workstation sowie die langen Gespräche rund um Physik.

Großen Dank an Frau Marlene Knobloch vom Dezernat II für ihr Engagement beim Erlangen des Graduierten-Stipendiums.

Ich danke den Bibliothekarinnen Frau Pia Seyler-Dielmannn und Frau Jutta Scheikowski für das rasche Beschaffen so mancher Publikation.

Allen Mitarbeitern der Feinmechanik-Werkstatt unter der Leitung von Herrn Erich Zanger danke ich für die Anfertigung zahlreicher Teile für das Spektrometer und anderer Vorrichtungen sowie Rat und Hilfe bei der Konstruktion.

Dem Beschleunigerteam unter der Leitung von Karl Schneider danke ich für die Bereitstellung der Vakuumpumpen. Jedesmal, wenn es Probleme mit der Vakuumtechnik

gab, war das Team zur Stelle.

Klaus Ullmann, Sven Schößler, Mirko Hattat und Achim Czasch waren stets mit kompetentem Rat da, wenn der PC offensichtlich „gesponnen“ hat.

Dem Technical Support der ALS-Beamline am Lawrence Berkeley National Laboratory, Frau Elke Arenholz und Mr. Anthony T. Young danke ich für die große Unterstützung während der Strahlzeit.

Am Experiment haben viele Leute mit angepackt: Mike Prior, Allen Landers, Lew Cocke, Thorsten Weber, Till Jahnke, Sven Schössler, Jürgen Nickles, Susanne Kammer, Jürgen Rösch, Timur Osipov, Ottmar Jagutzki. Für ihren tätigen Einsatz sei an dieser Stelle gedankt.

Mein Vater hat durch manche Verständnisfrage dafür gesorgt, daß ich den Text präziser formulierte.

Herzlich möchte ich mich bei meinem Freund Eckhard Uhrig für die immer vorhandene Unterstützung bedanken. Als „entfernter“ Kollege aus dem Gebiet der Festkörperphysik war er dennoch ein kompetenter Diskussionspartner.

Dem Bundesministerium für Bildung und Forschung, der Deutschen Forschungsgemeinschaft, dem US-Department for Energy, der Hermann-Willkomm-Stiftung und der Graduiertenförderung des Landes Hessen sei für die finanzielle Unterstützung der Arbeit gedankt.

*Schließlich danke ich allen namenlosen Elektronen und Heliumionen,  
die bei diesem Experiment mitgemacht und sich somit um die  
Erforschung der Elektronenkorrelation verdient gemacht haben.*



# Lebenslauf

Alexandra Michaela Christina Knapp,  
geboren am 24. Juli 1975 in Frankfurt am Main

1982 - 1986	Gruneliusschule (Grundschule in Frankfurt am Main)
1986 - 1995	Schillerschule (Gymnasium in Frankfurt am Main)
8/1992 - 1/1993	Austauschschülerin an der „El Camino Fundamental High School“ in Sacramento, Kalifornien (USA)
6/1995	Allgemeine Hochschulreife (Note: 1,8)
10/1995 - 12/2000	Studium der Physik an der Johann Wolfgang Goethe-Universität
30.09.1997	Vordiplom in Physik, Nebenfach: Chemie (Note: „gut“)
9/1999 - 8/2000	Diplomarbeit: „Heliumdoppelionisation durch Elektronenstoß - Aufbau einer (e,3e)-Apparatur“, durchgeführt am Institut für Kernphysik (IKF) der J. W. Goethe-Universität bei Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking
22.12.2000	Diplom in Physik, Nebenfach: Astronomie (Note: „sehr gut“)
01/2001 - 07/2001	wissenschaftliche Mitarbeiterin am IKF
02/2001	Beginn der Promotion an der J. W. Goethe-Universität bei Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking
08/2001 - 12/2003	Graduiertenstipendium zur Förderung von Nachwuchswissenschaftlern studentische Hilfskraft bei der Firma Roentdek GmbH
01/2004 - 12/2004	wissenschaftliche Mitarbeiterin am IKF

## Forschungsaufenthalte:

02/2001	Synchrotronstrahlenquelle Advanced Light Source des Lawrence Berkeley National Laboratory, Kalifornien, USA
07/2002	Synchrotronstrahlenquelle Spring8 am Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Harima Science City, Japan
11/2002	Research School of Physical Sciences at the Australian National University, Canberra, Australien
11/2003	Synchrotronstrahlenquelle Bessy II, Berlin

## Sonstiges:

8/1998 - 9/1998	Werkstudentin am Daimler-Benz-Forschungszentrum in Frankfurt am Main
2/1999 - 3/2000	studentische Hilfskraft an den Beschleunigern des IKF